Tome 22 | N° 1 | Janvier 1961

LE JOURNAL DE PHYSIQUE
ET
LE RADIUM

ÉTUDE D'UNE DÉCHARGE A FRÉQUENCE RADIO DANS L'OXYGÈNE (*)

Par L. HERMAN, Mme R. HERMAN et D. RAKOTOARIJIMY,

Résumé. — A l'aide d'une décharge à fréquence radio passant dans un courant d'oxygène à la pression atmosphérique, il a été possible, en utilisant un spectrographe à grande dispersion, d'étendre l'analyse de vibration et de rotation des bandes du système de Schumann-Runge ($B\ ^3\Sigma$ — $X\ ^3\Sigma$) de O_2 jusqu'à 5 700 Å. Nous avons été également en mesure de mettre en évidence une prédissociation à $v' = 3$ et $v' = 4$. Le niveau $v' = 4$ est fortement prédissocié et il ne semble pas y avoir de dissociation appréciable à $v' = 5$.

Dans ces conditions, nous observons dans la même décharge quelques nouvelles bandes atmosphériques. Les séquences $\Delta v = +1$ et $\Delta v = 0$ montrent chacune 5 bandes. Nous suggérons que l'excitation des bandes atmosphériques est due à l'interaction entre les états $X\ ^3\Sigma$ et $b\ ^1\Sigma$; elle serait favorisée par la pression élevée du gaz.

Abstract. — In a high frequency discharge through flowing oxygen at atmospheric pressure, it was possible, with high dispersion spectrographs, to extend the vibrational and rotational analysis of the Schumann-Runge bands ($B\ ^3\Sigma$ — $X\ ^3\Sigma$ system) up to 5 700 Å. We have been able also to show a predissociation at $v' = 3$ and 4. The level $v' = 4$ is strongly predissociated. There seems to be no predissociation at $v' = 5$.

In the same discharge, we have observed some new atmospheric bands. Each of the $\Delta v = +1$ and $\Delta v = 0$ sequences have five bands. We suggest that the excitation of the atmospheric bands is due to an interaction between the $X\ ^3\Sigma$ and $b\ ^1\Sigma$ states enhanced at high pressure.

Introduction. — On sait que les raies aurorales interdites de l'oxygène [OI] 6 300 — 6 364 peuvent être excitées par dissociation du niveau supérieur du système de bandes de Schumann-Runge de O_2 (Cabannes et Garrigue, 1936 ; Herman et Weniger, 1950*a* ; Chamberlain, 1958). En raison de son importance pour la physique de la haute atmosphère, nous avons repris l'étude de ce système avec une dispersion plus grande. Nous avons utilisé un générateur de haute fréquence (45 Mz) et un courant d'oxygène à la pression atmosphérique.

L'aspect du spectre obtenu dépend du débit d'oxygène et du voltage employés. Pour un fort débit et un fort voltage, on obtient un spectre atomique assez intense comprenant les raies de OI et les raies intenses de OII, superposées aux bandes de Schumann-Runge. Au fur et à mesure que l'on diminue le voltage, l'intensité des raies atomiques permises diminue et l'intensité relative des raies interdites et des bandes de Schumann-Runge augmente (*fig.* 1). Cette série d'expériences ayant montré les conditions favorables pour l'émission des bandes de Schumann-Runge correspondaient à une faible excitation, on a fait varier le débit d'oxygène. L'intensité des raies interdites varie peu ; par contre, on constate que, sans débit d'oxygène, c'est-à-dire lorsque la décharge a lieu dans l'air, on observe les séquences $\Delta v = 2$,3 et 4 du premier système positif de l'azote.

Lorsqu'on emploie un faible débit, seules subsistent les bandes les plus intenses de ce système et les bandes atmosphériques commencent à apparaître. Lorsqu'on augmente encore le débit, les bandes de N_2 disparaissent et les bandes atmosphériques deviennent intenses. Lorsqu'on augmente l'intensité du courant, il apparaît un fond continu d'émission.

Nous étudierons tout d'abord les bandes de Schumann-Runge.

Système de Schumann-Runge. — Ce système montre une structure compliquée s'étendant du rouge à l'ultra-violet. Les bandes disparaissent

(*) Ce travail a été subventionné en partie par Air Force Cambridge Researche Center, Office Européen de Air Research and Development Command.

au-dessous de 2 100 Å en raison de l'absorption par des couches extérieures plus froides de l'étincelle. La structure des bandes avait été étudiée dans la région visible par Lochte-Holtgreven et Dieke (1929) jusqu'à 4 350 Å. Nous avons pu les photographier à l'aide d'un spectrographe à 3 prismes

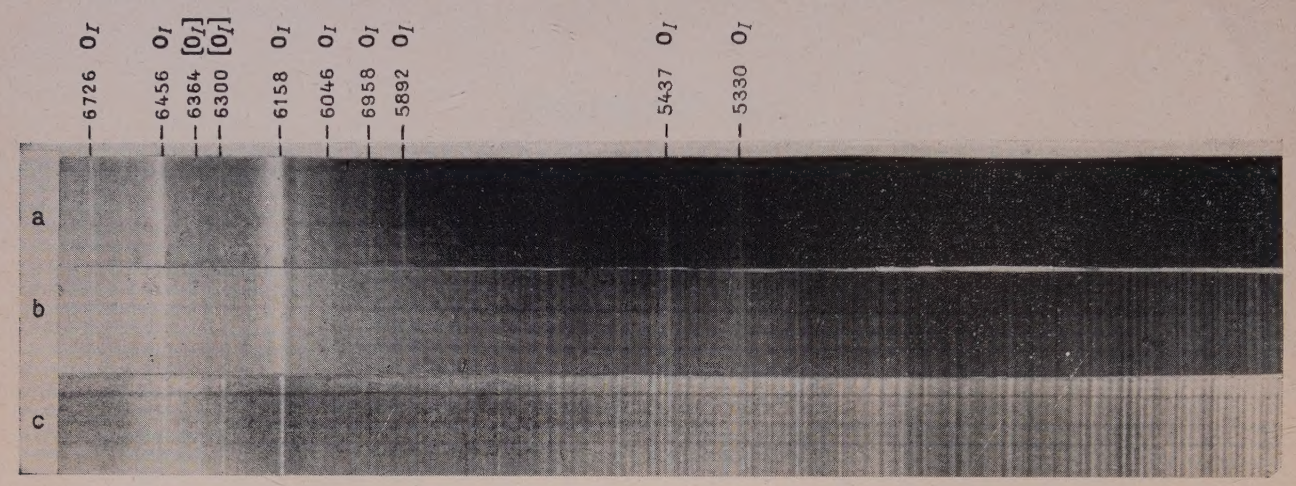


Fig. 1. — Ces 3 spectres ont été obtenus en diminuant la chute de tension dans l'arc de *a* vers *b* et *c*. On voit que les raies interdites [O*I*] et les bandes de Schumann-Runge augmentent alors d'intensité.

de flint donnant une dispersion de 7,5 Å/mm vers 7 000 Å. L'analyse a été possible jusque vers 4 900 Å ; au delà, la dispersion devient trop petite en même temps que la superposition des bandes augmente, la parabole de Franck-Condon étant large. Nous avons utilisé alors un spectrographe à réseau échelle donnant une dispersion de 2,5 Å/mm. Dans ces conditions, l'analyse a pu être poussée jusqu'à 5 700 Å. Nous donnons dans le tableau I la liste des bandes nouvelles analysées.

TABLEAU I

Longueurs d'onde des origines des bandes du système de Schumann-Runge que nous observons.
(Les valeurs entre parenthèses ont été calculées. Elles correspondent à des bandes faibles.)

v'' \ v'	0	1	2	3	4	5	6
20	4 422,9						
21		4 503,5	4 372,6				
22			4 586,6	4 455,6			
23			4 816,8	4 672,4			
24			5 064,8	4 905,3	(4 761,3)		
25			5 332,1	5 155,7	(4 996,8)		
26			(5 620,7)	(5 425,0)	(5 249,3)	(5 091,5)	
27				(5 714,5)	(5 519,95)	5 345,61	
28						(5 671)	(5 466,1)
29							(5 719,8)

Le tableau II donne les longueurs d'onde et les fréquences des raies mesurées. Les valeurs des constantes moléculaires B', B'', D', D'' ont été déterminées par la méthode graphique indiquée par Herzberg (1950) en portant $(K + 1/2)^2$ en abscisses et $\frac{\Delta_2 F}{K + 1/2}$ en ordonnées (colonnes 2 et 3 des tableaux III et IV) et par la méthode de Birge (colonne 5, tableaux III, IV) qui donne

$$4B_v = \frac{\Sigma[\Delta_2 F(K) + 8D_v(K + 1/2)^3]\,(K + 1/2)}{\Sigma(K + 1/2)^2}$$

où D_v est calculé par les formules

$$D_v = D_e + \beta_e(v + 1/2)$$

$$D_e = \frac{4B_e}{\omega_e^2},$$

et

$$\beta_e = D_e\left(\frac{8\,\omega_e\, x_e}{\omega_e} - \frac{5\alpha_e}{B_e} - \frac{\alpha_e^2\,\omega_e}{24 B_e^2}\right)$$

avec

$$\alpha_e = \frac{6\sqrt{\omega_e\, x_e\, B_e^3}}{\omega_e} - \frac{6B_e^2}{\omega_e}.$$

Les valeurs obtenues pour D_v figurent dans la colonne 4, tableaux III et IV. On a en outre déter-

miné ΔG (et α) par la méthode graphique décrite par Herzberg en portant $[R_{v'v''_1}(K) - R_{v'v''_2}(K)]$ ou $[R_{v'_1v''}(K-1) - R_{v'_2v''}(K-1)]$ en fonction de $K(K+1)$ (tableau V).

TABLEAU II

Longueurs d'onde, nombres d'onde et différences des termes pour les bandes (1,21), (2,21), (2,22), (2,23), (2,24), (2,25), (3,23), (3,23), (3,24)

Bande (1,21)

K	ν_R	ν_P	$\Delta_2 F'$	$\Delta_2 F''$
1				
3				
5				
7				
9	22 187,0	22 158,4	29,0	
11	76,6	141,7	34,9	45,7
13	65,8	121,6	44,2	55,0
15	51,5	102,1	49,4	63,7
17	34,8	078,6	56,2	72,9
19	14,8	052,3	62,5	82,5
21	22 093,3	023,7	69,6	91,1
23	068,9	21 994,1	74,8	99,2
25	041,1	960,3	80,8	108,6
27	011,1	925,6	85,5	115,5
29	21 981,5	887,2	94,3	123,9
31	946,3	847,0	99,3	134,5
33	908,3	803,2	105,1	143,1
35	871,4	755,8	115,6	152,5
37	830,3	708,5	121,8	162,9
39	786,1	652,6	133,5	177,7
41	740,6			
43	692,0			
45				
47				
49				
51				

Bande (2,21)

K	ν_R	ν_P	$\Delta_2 F'$	$\Delta_2 F''$
33	22 57,37	22 53,76	103,61	142,05
35	16,42	06,96	109,46	150,41
37	472,95	357,31	115,64	159,11
39	26,82	04,93	121,89	168,02
41	378,32	250,38	127,94	176,44
43	26,90	193,57	133,33	184,75
45	273,31	33,92	139,46	192,98
47	17,15	071,81	145,34	201,57
49	158,15	07,48	150,67	209,67
51	096,84	21 940,49	156,35	217,66
53	33,09	870,65	162,44	226,19
55	21 967,25	98,59	168,66	234,50

TABLEAU II (*suite*)

K	ν_R	ν_P	$\Delta_2 F'$	$\Delta_2 F''$
57	898,30	724,70	173,60	242,55
59	27,15	648,11	179,04	250,19
61	752,92			
63	676,09			

Bande (2,22)

K	ν_R	ν_P	$\Delta_2 F'$	$\Delta_2 F''$
1	21 799,64	21 795,70	3,94	
3	99,64	87,67	11,97	11,97
5	97,55	80,17	17,38	19,47
7	92,75	68,84	23,91	28,71
9	85,39	55,66	29,73	37,09
11	75,85	39,34	36,51	46,05
13	63,62	21,35	42,27	54,50
15	48,95	00,93	48,02	62,69
17	32,40	677,36	55,04	71,59
19	13,10	51,96	61,14	80,44
21	21 690,483	21 622,974	67,509	90,13
23	665,710	592,898	78,812	97,585
25	639,027	560,346	78,681	105,364
27	610,447	525,344	85,103	113,683
29	579,474	489,348	90,126	121,099
31	545,664	447,671	97,993	131,803
33	509,506	405,423	104,083	140,241
35	470,881	361,059	109,823	148,447
37	429,604	314,182	115,422	156,700
39	386,421	264,690	121,731	164,914
41	340,586	212,847	127,739	173,574
43	292,362	158,061	134,301	182,525
45	241,648	103,543	138,105	188,819
47	189,422	044,682	144,740	196,966
49	134,681	20 983,417	151,264	206,005
51	076,582	920,450	156,132	214,231
53	21 016,721	20 854,509	162,212	222,073

Bande (2,23)

K	ν_R	ν_P	$\Delta_2 F'$	$\Delta_2 F''$
1				
3				
5	20 756,27			
7	20 752,86	20 729,20	23,66	27,07
9	20 745,54	20 716,27	29,27	33,59
11	20 736,98	20 701,77	35,21	43,77
13	20 726,02	20 684,04	41,98	52,94
15	20 712,88	20 664,28	48,60	61,74
17	20 697,18	20 642,27	54,91	70,61
19	20 678,92	20 617,79	61,13	79,39
21	20 658,82	20 591,20	67,62	87,72
23	36,22	63,08	73,14	95,74
25	11,07	31,96	79,11	104,26
27	20 584,25	20 499,12	85,13	111,95
29	55,26	63,75	91,51	120,50

TABLEAU II (*suite*)

K	ν_R	ν_P	$\Delta_2 F'$	$\Delta_2 F''$
31	23,57	26,45	97,12	128,81
33	20 490,05	20 386,88	103,17	136,69
35	53,83	44,85	108,98	145,20
37	16,06	20 300,03	116,03	153,80
39	20 375,95	20 253,85	122,10	162,21
41	32,57	04,93	127,64	171,02
43	20 287,55	20 153,85	133,70	178,72
45	40,56	20 100,89	139,67	186,66
47	20 190,77	20 045,75	145,02	194,81
49	38,95	19 988,20	150,75	202,57
51	20 085,22	28,79	156,43	210,16
53	29,21			

Bande (2,24)

K	ν_R	ν_P	$\Delta_2 F'$	$\Delta_2 F''$
1				
3				
5				
7				
9				
11		19 690,07		
13		674,65		
15		656,27		
17	19 688,72	635,70	53,02	
19	673,64	612,39	61,25	76,33
21	654,81	19 587,45	67,36	86,19
23	634,04	560,55	73,49	94,26
25	611,09	531,74	79,35	102,30
27	19 585,92	500,72	85,20	110,37
29	558,71	467,23	91,48	118,69
31	529,64	431,36	98,28	127,35
33	19 498,67	392,69	105,98	136,95
35	464,84	353,68	111,16	144,99
37	429,02	312,18	116,84	152,66
39	19 390,40	268,67	121,73	160,35
41	350,70	222,95	127,75	167,45
43	309,16	175,28	133,88	175,42
45	19 265,41	125,00	140,41	184,16
47	218,80	073,69	145,11	191,72

Bande (2,25)

K	ν_R	ν_P	$\Delta_2 F'$	$\Delta_2 F''$
37	18 454,8	18 349,6	115,2	
39	430,8	309,3	121,5	155,5
41	393,8	264,8	129,0	166,0
43	354,7	221,5	133,2	172,3

Bande (3,22)

TABLEAU II (*suite*)

K	ν_R	ν_P	$\Delta_2 F'$	$\Delta_2 F''$
1				
3				
5				
7				
9				
11	22 414,8	22 379,6	35,2	
13	403,2	360,1	43,1	54,7
15	389,1	340,1	49,0	63,1
17		316,7		72,4
19	349,1	290,8	58,3	
21	327,6	259,0	68,6	90,1
23	299,3			
25	273,9	194,8	79,1	104,5
27		158,4		115,5
29	208,6	121,6	87,0	
31	172,7	078,6	94,1	130,0
33	134,9	033,9	101,0	138,8
35	093,3	21 986,4	106,9	148,5
37	052,3	937,2	115,1	156,1
39	006,2			
41	21 960,3			
43	905,0			
45	852,8			
47	798,5			
49	740,6			

Bande (3,23)

K	ν_R	ν_P	$\Delta_2 F'$	$\Delta_2 F''$
1				
3				
5				
7				
9				
11	21 376,6			
13	363,4			
15	350,6			
17	336,0	21 279,3	56,7	71,3
19	316,0	253,9	62,1	82,1
21	292,9	227,8	65,1	88,2
23		196,3		96,6
25	242,6	161,3	81,3	
27	214,2	130,4	83,8	112,2
29	181,4	091,2	90,2	123,0
31	149,2	055,2	94,0	126,2
33	113,9	012,7	101,2	136,5
35	076,0	20 968,2	107,8	145,7
37	033,9	921,7	112,2	154,3
39	20 992,4	872,7	119,7	161,2
41	945,3	821,9	123,4	171,0
43	898,9	767,0	131,9	178,3
45	848,4	713,6	134,8	185,3
47	796,8			
49	741,1			
51	683,6			
53	623,0			

TABLEAU II (*suite*)

Bande (3,24)

K	ν_R	ν_P	$\Delta_2 F'$	$\Delta_2 F''$
1				
3				
5				
7				
9				
11				
13				
15				
17				
19				
21				
23	20 266,0			
25	243,0	20 166,3	76,7	99,7
27	214,8	132,5	82,3	110,5
29	186,6	098,1	88,5	116,7
31	155,7	061,0	94,7	125,6
33	122,4	020,9	101,5	134,8
35	085,6	19 976,1	109,5	146,3
37	048,2	929,5	118,7	156,1
39	009,7	887,8	121,9	160,4
41	19 966,9	841,0	125,9	168,7
43	23,1	790,6	132,5	176,3

TABLEAU III

Constantes de rotation B'_v et D'_v pour le niveau supérieur $B\ ^3\Pi$

Bande	B'_2 graph.	D'_2 graph.	D'_2 calc.	B'_2 Birge
(2,21)	0,786	$4{,}8 . 10^{-6}$		0,785
(2,22)	0,786	$4{,}8 . 10^{-6}$		0,784
(2,23)	0,784	$4{,}7 . 10^{-6}$	$4{,}68 . 10^{-6}$	0,784
(2,24)	0,788	$5{,}6 . 10^{-6}$		0,788
	moy. 0,786	$5{,}0 . 10^{-6}$		moy. 0,785
	B'_3 graph.	D'_3 graph.	D'_3 calc.	B'_3 Birge
(3,22)				0,769
(3,23)	0,769		$4{,}76 . 10^{-6}$	0,775
(3,24)				0,771
(3,25)				0,780
				moy. 0,774

TABLEAU IV

Constantes de rotation B''_v ; D''_v pour le niveau inférieur $X\ ^3\Sigma$

Bande	B''_{21} graph.	D''_{21} graph.	D''_{21} calc.	B''_{21} Birge
(2,21)	1,105	$5{,}3 . 10^{-6}$	$4{,}95 . 10^{-6}$	1,104
	B''_{22} graph.	D''_{22}	D''_{22}	D''_{22}
(2,22)	1,091	$4{,}9 . 10^{-6}$	$4{,}95 . 10^{-6}$	1,085
(3,22)				1,085
	B''_{23}	D''_{23}	D''_{23}	B''_{23}
(2,23)	1,068	$4{,}1 . 10^{-6}$	$5{,}0 . 10^{-6}$	1,069
(3,23)	1,082	10^{-5}		1,068
	B''_{24}	D''_{24}	D''_{24}	B''_{24}
(2,24)	1,055	$6 . 10^{-6}$	$5{,}0 . 10^{-6}$	1,049
(3,24)				1,055
	B''_{25}	D''_{25}	D''_{25}	B''_{25}
(2,25)				1,033

TABLEAU V

Valeurs observées et calculées de $\Delta G_{n+1/2}$

	$v' = 2$	$v' = 3$	Calculé
$\Delta G_{21,5}$	1 066,9		1 067,5
$\Delta G_{22,5}$	1 040,6	1 043,0	1 042,9
$\Delta G_{23,5}$	1 011,8	1 011,15	1 016,2

Les bandes (1,22) et (2,25) n'ont pu être identifiées qu'en partie. La bande (1,22) a la plupart de ses raies « blend » avec celles d'autres bandes et est assez faible. La bande (2,25) est « blend », en partie, avec la bande (5,27)

Prédissociation. — On n'a pas donné de bandes à $v' = 4$. Celles-ci sont en effet très difficiles à mesurer en raison de leur manque de définition. Les bandes à $v' = 3$ sont beaucoup plus diffuses que les bandes à $v' = 2$. Les bandes à $v' = 4$ sont si diffuses qu'on ne peut pas les mesurer. Un résultat analogue a été trouvé également dans l'ultraviolet par P. K. Caroll (1959). D'après cet auteur, la prédissociation commencée à $v' = 3$, est très forte à $v' = 4$ et beaucoup moins marquée à $v' = 5$. Nos résultats sont en parfait accord avec ces remarques.

De nombreux travaux ont été faits sur cette prédissociation. Flory (1936) avait signalé une prédissociation à $v' = 3$. Feast (1949 ; 1950) avait rejeté l'hypothèse de Flory sous le prétexte qu'il avait observé des bandes à $v' = 3$ en émission. Nous avons également identifié des bandes, en émission, à $v' = 3$ et $v' = 4$ dans l'ultraviolet (Rakotoarijimy et autres, 1958). Ceci s'explique

aisément du fait que l'élargissement s'exprime en cm^{-1}, or, un élargissement de 10 cm^{-1}, par exemple, autour de 2 500 Å correspond à 0,6 Å alors qu'à 5 000 Å, il correspond à 2,5 Å. Dans nos conditions expérimentales, nous avions une dispersion de l'ordre de 5 Å par mm dans l'ultraviolet, ce qui donnait un élargissement de 1/10 mm. A 5 000 Å, nous avons une dispersion de 2,5 Å par mm, ce qui donne un élargissement de 1 mm. Il est évident que, dans nos conditions expérimentales, les raies qui n'avaient aucune apparence particulière dans l'ultraviolet sont, par contre, très élargies dans le visible.

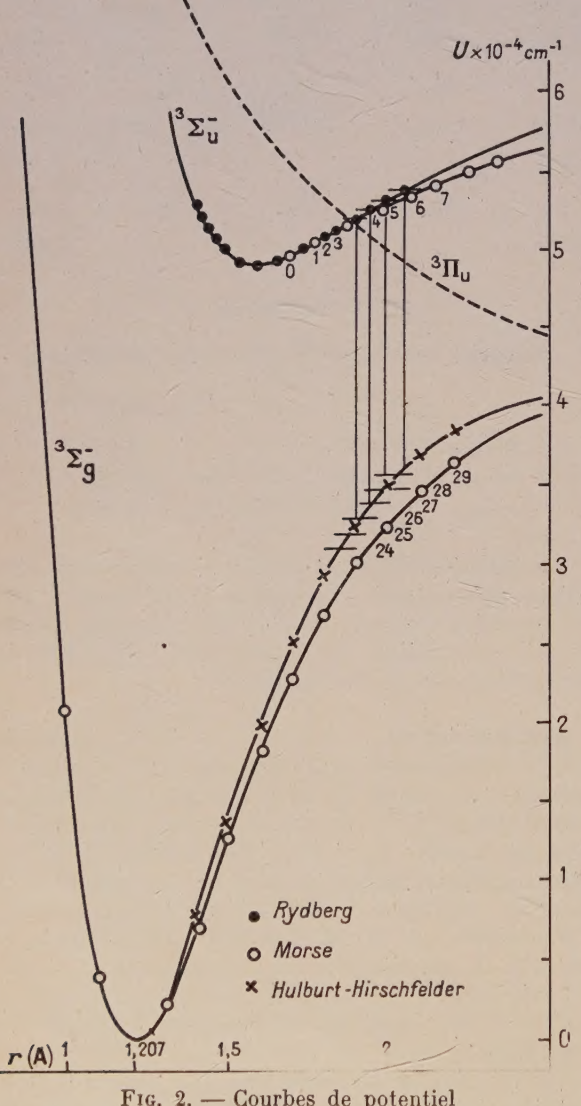


FIG. 2. — Courbes de potentiel pour les niveaux $^3\Sigma_g^-$ et $^3\Sigma_u^-$ de O_2.

Cette prédissociation avait été prévue par P. G. Wilkinson et R. S. Mulliken (1957). Pour ces auteurs l'intersection de la courbe instable aurait lieu vers 3,5 alors que, pour Caroll, elle aurait lieu sensiblement pour $v' = 4$. Nos observations semblent montrer que le point d'intersection est au voisinage de $v' = 4$, mais situé entre 3 et 4, sensiblement vers 3,75. D'ailleurs, on devrait pouvoir préciser davantage cette position. D'après Caroll, le niveau provoquant la perturbation serait un niveau $^3\Pi_u$. La transition serait permise, ce qui expliquerait l'intensité de la perturbation.

Sur la figure 2, nous avons tracé les courbes de potentiel pour le niveau inférieur $X\ ^3\Sigma_g^-$ et le niveau supérieur $B\ ^3\Sigma_u^-$. Pour le niveau inférieur, nous avons utilisé la formule de Morse et la méthode de Hulburt et Hirschfelder. Pour le niveau supérieur, la formule de Morse et les résultats de Rydberg. On voit qu'il est vraisemblable que la courbe donnée par la formule de Hulburt — Hirschfelder soit plus approchée de la vraie courbe de potentiel que celle de Morse par comparaison avec les courbes relatives au niveau supérieur. On voit d'après cette figure qu'on doit s'attendre, par application du principe de Franck-Condon, à un maximum d'intensité pour les bandes (2,23) ; (3,24) ; (4,26) ; (5,27) ; (6,29). Nous avons également tracé, sur cette figure, l'état hypothétique répulsif $^3\Pi_u$ qui donnerait la prédissociation du niveau $B\ ^3\Sigma_u^-$ à v' voisin de 4. Dans la région située autour de 5 400 Å, d'après le tableau calculé à partir de la formule

$$\nu = 49\ 357{,}55 + (698{,}86\ v' - 10{,}708\ v'^2 - 0{,}194\ v'^3) - (1\ 568{,}33\ v'' - 11{,}983\ v''^2 + 0{,}0517\ v''^3 - 0{,}00143 v''^4)$$

donnée par Curry et Herzberg (1934), les bandes possibles sont : (2,25) ; (3,26) ; (4,26) ; (5,27) ; (6,27) ; (6,28). Les seules raies distinctes s'interprètent comme (2,25) et (5,27). Les autres bandes possibles (3,26) et (4,26) se manifestent par des paquets flous répartis tout le long du spectre dans cette région. L'étude des régions de plus grande longueur d'onde se poursuit.

Bandes atmosphériques. — En même temps que les bandes de Schumman-Runge, lorsqu'on augmente le débit d'oxygène, on obtient 3 séquences de bandes assez bien développées. On peut les identifier aux bandes atmosphériques

$$b\ ^1\Sigma_g^+ - X\ ^3\Sigma_g^-$$

de O_2 comme on peut le voir dans le tableau IV dans lequel on a porté les longueurs d'onde des têtes mesurées et les longueurs d'onde des têtes calculées. Les écarts entre les valeurs calculées et les valeurs mesurées sont de l'ordre des erreurs de mesure, la dispersion variant de 110 à 200 Å par mm dans cette région. Les bandes en italique n'ont pas été observées précédemment. La limite du système à 8 698 Å est purement instrumentale et due à la chute de sensibilité des plaques utilisées (*IN* Kodak non hypersensibilisées) (tableau VI).

TABLEAU VI

LONGUEURS D'ONDE MESURÉES ET CALCULÉES DES TÊTES DES BANDES ATMOSPHÉRIQUES $b\,^1\Sigma - X\,^3\Sigma$ OBSERVÉES DANS UNE DÉCHARGE DANS L'OXYGÈNE SOUS PRESSION ATMOSPHÉRIQUE

(v', v")	λ calc.	λ obs.	(v', v")	λ calc.	λ obs.	(v', v")	λ calc.	λ obs.
(1,0)	6 868	6 866	(0,0)	7 589	7 598	(0,1)	8 583	8 598
(2,1)	6 955	6 953	(1,1)	7 685	7 689	(1,2)	8 685	8 698
(3,2)	7 046	*7 043*	(2,2)		O*I*			
(4,3)	7 141	*7 141*	(3,3)	7 879	7 876			
(5,4)	7 242	*7 240*	(4,4)	7 984	*7 987*			
			(5,5)	8 096	*8 103*			

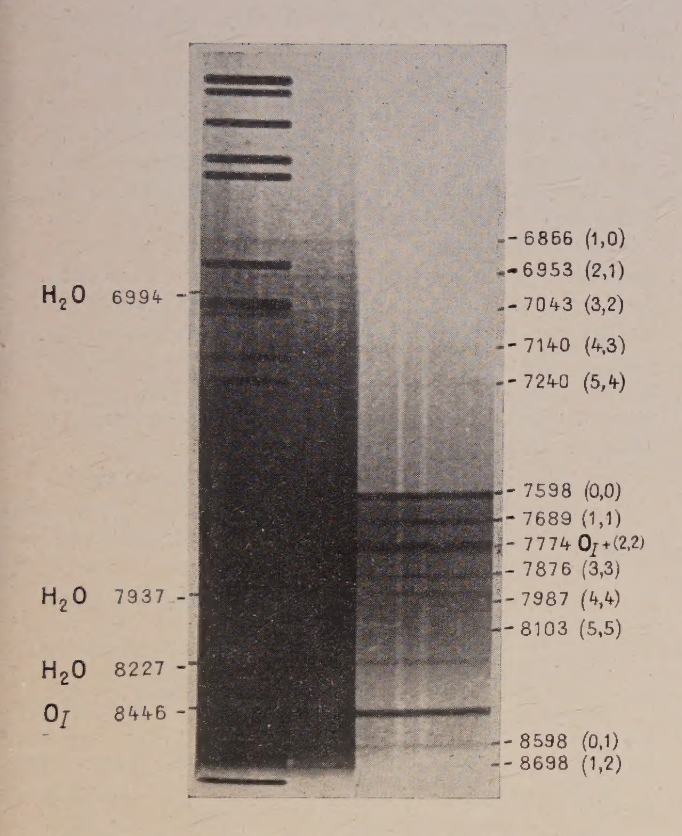


FIG. 3. — Bandes atmosphériques observées dans une décharge dans l'oxygène sous la pression atmosphérique.

On observe en outre, comme on peut le voir sur la figure 3, trois bandes de la vapeur d'eau 6 994 Å, 7 957 Å, et 8 227 Å.

On sait que les bandes atmosphériques correspondent à une transition interdite et sont difficiles à observer en émission. Toutefois, Kaplan (1947) les avait obtenues dans un mélange $N_2 + O_2$, R. C. Herman, G. R. Hornbeck et S. Silverman (1949) dans un mélange $CO + O_2$. R. et L. Herman (1949) ont observé, en présence de He et de X, que l'intensité relative des bandes atmosphériques augmente avec la pression. Les bandes observées sont (0,1), (1,2), (0,0), (1,1), (2,2), (1,0), (2,0), (3,0). Il est remarquable que dans le cas de X, on observe les raies interdites 5 577 et 2 972 de O*I*. Dans l'oxygène pur, R. Herman et S. Weniger (1950*b*) avaient trouvé un maximum d'émission pour les bandes atmosphériques à des pressions de quelques dizaines de mm de mercure. Elles étaient accompagnées d'un spectre O*I* et d'un fond continu allant de 9 000 à 2 500 Å. Pour des pressions de l'ordre de 1 atmosphère, on n'avait plus que les raies de O*I* et de O*II* et un fond continu d'origine moléculaire. On a pu montrer, dans ces expériences, que l'excitation était électronique et que les bandes atmosphériques et les bandes de Schumann-Runge étaient excitées par des chocs de faible énergie. Nous retrouvons également le fond continu signalé dans les expériences ci-dessus lorsqu'on augmente la densité de courant.

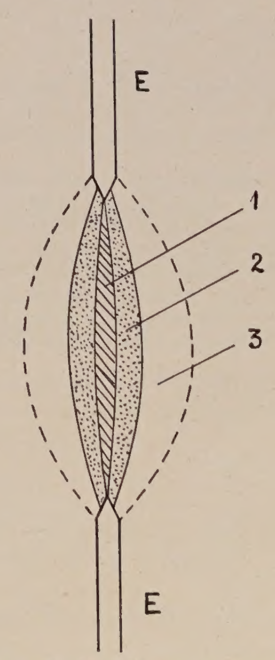


FIG. 4. — Schéma de l'arc haute fréquence montrant les différentes couches d'émission et d'absorption.

Les raies O*I* et O*II* sont émises dans la zone 1 de forte excitation ; les bandes de Schumann-Runge sont émises dans la zone 2 et réabsorbées dans la zone 3.

TABLEAU VII

NOMBRES D'ONDE EN cm^{-1} DES NIVEAUX DE VIBRATION DES ÉTATS ÉLECTRONIQUES $^1\Sigma_g^+$ ET $^3\Sigma_g^-$ DE O_2

$^1\Sigma_g^+$		$^3\Sigma_g^-$			$^1\Sigma_g^+$		$^3\Sigma_g^-$		
v	E_v	v	E_v	ΔE	v	E_v	v	E_v	ΔE
0	13 908	9	13 963	— 55	5	20 653	14	20 480	+ 139
1	15 313	10	15 309	+ 4	6	21 918	15	21 716	173
2	16 690	11	16 636	+ 54	7	23 156	16	22 928	202
3	18 039	12	17 940	99	8	24 365	17	24 117	248
4	19 360	13	19 221	139	9	25 547	18	25 283	264
					10	26 700	19	26 424	276

Discussion. — Dans la décharge obtenue à l'aide du générateur R. F. on observe 3 zones représentées sur la figure 4 : la zone 1 parcourue par l'étincelle est celle où a lieu l'excitation et la décomposition des molécules (c'est cette région qui donne naissance aux raies *OI* et *OII*) ; dans la zone 2 a lieu la recombinaison, on y observe surtout les bandes de Schumann-Runge ; dans la zone 3 a lieu la réabsorption.

Bates et Dalgarno (1953) ont montré que la réaction

$$O(^1D) + O_2(X\ ^3\Sigma_g^-,\quad v = 0) \rightarrow O(^3P_2) + O_2(b\ ^1\Sigma_g^+, v = 2)$$

peut avoir lieu avec une grande probabilité parce que le bilan d'énergie est très favorable. Or, nous avons ici une grande concentration d'atomes ^1D mais pas de concentration importante de molécules O_2 ($b\ ^1\Sigma_g^+\ v = 2$). Il est donc peu probable que cette réaction ait lieu. Par contre, lorsqu'on compare les énergies des niveaux de vibration des états $b\ ^1\Sigma_g^+$ et $X\ ^3\Sigma_g^-$ on constate que, sur un grand intervalle, les niveaux de vibration de ces deux états sont assez voisins, la distance étant inférieure à 0,03 eV, comme on peut le voir sur le tableau VII. On constate que la meilleure concordance (inférieure à 0,02 eV) a lieu entre 9 et 14 pour les quanta de vibration de l'état fondamental. Ces niveaux sont en effet très peuplés dans nos conditions expérimentales, il est donc possible que, par les chocs nombreux qui peuvent se produire, il y ait passage de l'état $^3\Sigma_g^-$ à l'état $b\ ^1\Sigma_g^+$, ce qui expliquerait l'extension inhabituelle des séquences dans les bandes atmosphériques.

Manuscrit reçu le 2 août 1960.

BIBLIOGRAPHIE

BATES (D. R.) et DALGARNO (A.), *J. Atmos. terrest. Phys.*, 1953, **4**, 112.
CABANNES (J.) et GARRIGUE (H.), *C. R. Acad. Sc.*, 1936, **203**, 484.
CARROLL (P. K.), *Astrophysical J.*, 1959, **129**, 794.
CHAMBERLAIN (J. W.), *Astrophysical J.*, 1958, **127**, 54.
CURRY (J.) et HERZBERG (G.), *Ann. der Physik*, 1934, **19**, 800.
FEAST (M. W.), *Proc. Phys. Soc.*, London, 1949, A **62**, 114.
FEAST (M. W.), *Proc. Phys. Soc.*, London, 1950, A, **63**, 549.
FLORY (P. J.), *J. Chem. Physics*, 1936, **4**, 23.
HERMAN (R. et L.), *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **229**, 931.
HERMAN (R.) et WENIGER (S.), *C. R. Acad. Sc.*, 1950*a*, **230**, 1594.
HERMAN (R.) et WENIGER (S.), *C. R. Acad. Sc.*, 1950*b*, **230**, 940.
HERMAN (R. C.), HOPFIELD (H. S.), HORNBECK (G. A.) et SILVERMAN (S.), *J. Chem. Physics*, 1949, **17**, 220.
HERZBERG (G.), Spectra of diatomic molecules (2e ed., New York, D. Van Nostrand C°) 1950.
KAPLAN (J.), *Nature*, 1947, **159**, 673.
LOCHTE-HOLTGREVEN (W.) et DIEKE (G. H.), *Ann. der Physik*, 1929, **3**, 937.
RAKOTOARIJIMY (D.), WENIGER (S.) et GRENAT (H.), *C. R. Acad. Sc.*, 1958, **246**, 2883.
WILKINSON (P. G.) et MULLIKEN (R. S.), *Astrophysical J.*, 1957, **125**, 594.

SUR LE CALCUL VARIATIONNEL DES PROPRIÉTÉS MOLÉCULAIRES

Par Françoise DUPONT-BOURDELET, Jacques TILLIEU et Jean GUY,
Institut de Physique, Faculté des Sciences de Lille,
et Groupe de Chimie Théorique de l'École Polytechnique.

Résumé. — Un formalisme général est exposé pour le calcul variationnel des propriétés moléculaires (électriques et magnétiques principalement), de manière à pouvoir tenir compte de plusieurs perturbations simultanées. Les énergies sont calculées explicitement jusqu'au 4e ordre et l'on montre qu'elles ne font intervenir que les fonctions perturbées jusqu'au 2e ordre. Moyennant certaines hypothèses, les équations et expressions obtenues sont décomposables (souvent sous forme simplement additive) soit par rapport aux divers opérateurs perturbateurs, soit par rapport à des groupes indépendants de particules (électrons et noyaux, par exemple).

Abstract. — A general formalism is set up for the variational calculation of molecular properties (especially, electric and magnetic) in order to account for several simultaneous perturbations. Energies are explicitly calculated up to the fourth order and it appears that the formulae only contain the perturbed functions of the first and second orders. By means of certain hypotheses, the equations and matrix terms can be separated (often in a simply additive form) either to different perturbating operators or to different independent groups of particles (e.g. electrons and nuclei).

I. **Introduction.** — Le nombre des applications de la méthode variationnelle au calcul des différentes propriétés des atomes et des molécules augmente continuellement. Outre un article général déjà ancien de Gans et Mrowka [1] qui semble être passé inaperçu, citons, sans prétendre faire une bibliographie complète, quelques articles sur le calcul des polarisabilités électriques [2], des susceptibilités magnétiques [3] et des différents effets intervenant en résonance paramagnétique nucléaire [4]. Dans ces conditions, il nous a semblé intéressant de présenter cette méthode sous une forme assez générale pour être utilisable rapidement dans de nombreux cas, même plus compliqués que ceux envisagés jusqu'à maintenant et de discuter diverses approximations que l'on est amené à utiliser au cours des applications. Partant d'un système moléculaire dans un état stationnaire non perturbé décrit par la fonction d'onde (f. o.) $\psi^{(0)}$ ou de manière équivalente, par le ket $|0>$, nous le soumettrons à diverses actions perturbatrices, par exemple un champ électrique et un champ magnétique extérieurs, ou encore des termes négligés en première approximation comme le champ dû à un moment magnétique nucléaire. Dans ces conditions, l'hamiltonien de la molécule perturbée peut être écrit sous la forme :

$$H = H^{(0)} + \varepsilon H^{(1)} + \varepsilon^2 H^{(2)}$$

où ε est un paramètre introduit pour la commodité des calculs et servant à repérer « l'ordre » de la perturbation.

Dans cet article, nous n'aurons pas besoin de préciser plus la forme des hamiltoniens perturbateurs $H^{(1)}$ et $H^{(2)}$. Remarquons simplement que nous supposons que H est au plus du 2e degré en ε.

Conformément à la théorie des perturbations, nous écrivons la f. o. perturbée sous la forme :

$$\psi = \psi^{(0)} + \varepsilon\psi^{(1)} + \varepsilon^2 \psi^{(2)} + \dots + \varepsilon^n \psi^{(n)} \dots \quad (2)$$

ou, en utilisant les vecteurs kets de Dirac :

$$|\psi> = |0> + \varepsilon|1> + \varepsilon^2|2> + \dots + \varepsilon^n|n> + \dots \quad (2')$$

Si nous voulons que la fonction ψ soit normalisée à tous les ordres en ε, nous devons satisfaire aux conditions successives

$$<1|0> + <0|1> = 0 \quad (3)$$

$$<0|2> + <2|0> + <1|1> = 0.$$

Il est commode de prendre la première condition sous la forme plus restrictive :

$$<0|1> = <1|0> = 0 \quad (3')$$

c'est-à-dire de choisir $\psi^{(1)}$ orthogonale à $\psi^{(0)}$. De même il peut être plus facile de choisir $\psi^{(2)}$ orthogonale à $\psi^{(0)}$ en imposant :

$$<2|0> = <0|2> = 0. \quad (4')$$

On peut passer d'ailleurs de $\psi^{(2)\prime}$ satisfaisant à (4′) à une fonction $\psi^{(2)}$ satisfaisant à (4) par :

$$\psi^{(2)} = \psi^{(2)\prime} - \frac{1}{2} <1|1> \psi^{(0)}$$

et on verra que les relations où figure $\psi^{(2)}$ ne dépendent pas de la condition utilisée.

De même l'energie perturbée est écrite

$$E = E^{(0)} + \varepsilon E^{(1)} + \varepsilon^2 E^{(2)} + \dots + \varepsilon^n E^{(n)} + \dots \quad (5)$$

Il est d'ailleurs assez rare que l'on désire aller au delà de la perturbation d'ordre 2 pour l'énergie. Toutefois, des travaux récents, notamment sur l'effet Kerr et les « hyper-polarisabilités » [5], font intervenir des énergies d'ordres supérieurs à 2 et, dans ce qui suit, nous expliciterons les expressions jusqu'à l'ordre 4.

II. **Calcul de l'énergie perturbée.** — Nous voulons déterminer les kets $|1>$, $|2>$, ... $|n>$ de manière que l'énergie :

$$E = \frac{<\psi|H|\psi>}{<\psi|\psi>} \tag{6}$$

soit minimum. Il revient au même d'annuler l'expression :

$$F = <\psi|H|\psi> - E <\psi|\psi> \tag{7}$$

qui serait effectivement nulle pour la fonction exacte, et la vraie valeur de E. Nous pouvons utiliser ce fait, dans le cadre de la méthode des perturbations, en annulant F aux différents ordres et en minimisant ensuite les termes correspondants de l'énergie. En développant H, ψ et E par rapport aux diverses puissances de ε, en tenant compte de l'équation de Schrödinger pour le système non perturbé et de l'hermiticité de $H^{(0)}$, soit

$$H^{(0)}|0> = E^{(0)}|0>$$

et

$$<0|H^{(0)}|j> = <j|H^{(0)}|0>^* = E^{(0)} <j|0>^* = E^{(0)} <0|j>$$

on obtient finalement l'expression :

$$\begin{aligned} F = {} & \varepsilon[<0|H^{(1)}|0> - E^{(1)}] + \varepsilon^2[<1|H^{(0)} - E^{(0)}|1> \\ & + <1|H^{(1)} - E^{(1)}|0> + <0|H^{(1)} - E^{(1)}|1> \\ & + <0|H^{(2)} - E^{(2)}|0>] + \varepsilon^3[<1|H^{(0)} - E^{(0)}|2> \\ & + <2|H^{(0)} - E^{(0)}|1> + <0|H^{(1)} - E^{(1)}|2> \\ & + <2|H^{(1)} - E^{(1)}|0> + <1|H^{(1)} - E^{(1)}|1> \\ & + <0|H^{(2)} - E^{(2)}|1> + <1|H^{(2)} - E^{(2)}|0> - E^{(3)}] \\ & + \varepsilon^4[<1|H^{(0)} - E^{(0)}|3> + <3|H^{(0)} - E^{(0)}|1> \\ & + <2|H^{(0)} - E^{(0)}|2> + <0|H^{(1)} - E^{(1)}|3> \\ & + <3|H^{(1)} - E^{(1)}|0> + <1|H^{(1)} - E^{(1)}|2> \\ & + <2|H^{(1)} - E^{(1)}|1> + <0|H^{(2)} - E^{(2)}|2> \\ & + <2|H^{(2)} - E^{(2)}|0> + <1|H^{(2)} - E^{(2)}|1> \\ & - E^{(3)}(<0|1> + <1|0>) - E^{(4)}]. \end{aligned} \tag{8}$$

Si nous voulons que F soit nulle quel que soit ε, nous devons avoir :

$$E^{(1)} = <0|H^{(1)}|0> \tag{9}$$

$$\begin{aligned} E^{(2)} = {} & <1|H^{(0)} - E^{(0)}|1> + <1|H^{(1)} - E^{(1)}|0> \\ & + <0|H^{(1)} - E^{(1)}|1> + <0|H^{(2)}|0> \end{aligned} \tag{10}$$

$$\begin{aligned} E^{(3)} = {} & <1|H^{(0)} - E^{(0)}|2> + <2|H^{(0)} - E^{(0)}|1> \\ & + <0|H^{(1)} - E^{(1)}|2> + <2|H^{(1)} - E^{(1)}|0> \\ & + <1|H^{(1)} - E^{(1)}|1> + <0|H^{(2)} - E^{(2)}|1> \\ & + <1|H^{(2)} - E^{(2)}|0> \end{aligned} \tag{11}$$

$$\begin{aligned} E^{(4)} = {} & <1|H^{(0)} - E^{(0)}|3> + <3|H^{(0)} - E^{(0)}|1> \\ & + <2|H^{(0)} - E^{(0)}|2> + <0|H^{(1)} - E^{(1)}|3> \\ & + <3|H^{(1)} - E^{(1)}|0> + <1|H^{(1)} - E^{(1)}|2> \\ & + <2|H^{(1)} - E^{(1)}|1> + <0|H^{(2)} - E^{(2)}|2> \\ & + <2|H^{(2)} - E^{(2)}|0> + <1|H^{(2)} - E^{(2)}|1>. \end{aligned} \tag{12}$$

A propos des formules (9) à (12) (que l'on généralise facilement pour un ordre n quelconque), nous pouvons faire les remarques suivantes : nous retrouvons le résultat bien connu que l'énergie perturbée d'ordre n ne dépend que des fonctions perturbées jusqu'à l'ordre $n - 1$; (9) est la formule habituelle pour l'énergie du premier ordre, Le 4e terme de (10) est la perturbation du 1er ordre correspondant au terme du second degré $H^{(2)}$ de l'hamiltonien perturbé. De même, les deux derniers termes de (11) correspondent à la perturbation du 2e ordre pour $H^{(2)}$, etc...

III. **Calcul de l'énergie du premier ordre.** — Le calcul de $E^{(1)}$ par la formule (9) ne présente pas de difficulté particulière puisqu'il ne nécessite que la connaissance de $\psi^{(0)}$. Il convient d'introduire maintenant certaines notions et approximations qui présentent un grand intérêt physique et qui serviront également pour les ordres supérieurs.

A) Additivité par rapport aux opérateurs de perturbation. — Explicitons la forme des hamiltoniens perturbateurs $H^{(1)}$ et $H^{(2)}$ afin de pouvoir envisager plusieurs perturbations simultanées. Nous écrirons, de manière conventionnelle :

$$H^{(1)} = \sum_{\mu=1}^{p} \lambda_\mu H_\mu^{(1)} = \boldsymbol{\lambda}.\boldsymbol{H}^{(1)} \tag{13-1}$$

$$H^{(2)} = \sum_{\mu,\nu=1}^{p} \lambda_\mu \lambda_\nu H_{\mu\nu}^{(2)} = (\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda}).\vec{\vec{H}}^{(2)}. \tag{13-2}$$

Le dernier membre de (13-1) représente le produit scalaire de deux vecteurs appartenant à un espace à p dimensions, somme directe des p espaces unidimensionnels relatifs aux divers opérateurs $H_\mu^{(1)}$; le 2e membre de (13-1) représente le produit doublement contracté du tenseur $\vec{\vec{H}}^{(2)}$ par le produit tensoriel $\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda}$.

Puisque $\vec{\vec{H}}^{(2)}$ n'intervient dans l'expression de l'énergie que par son produit doublement contracté avec le tenseur symétrique $\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda}$, on peut se borner à le considérer comme un tenseur symétrique. En outre, on ne diminue pratiquement pas la généralité en prenant des $H^{(2)}_{\mu\nu}$ réels.

Les définitions générales (13) sont destinées à tenir compte de la présence éventuelle de deux ou plusieurs opérateurs de perturbation scalaires, vectoriels ou tensoriels, réels ou complexes. Dans ces conditions, les λ_μ doivent, au même titre qu'ε, être considérés comme des paramètres de perturbation indépendants les uns des autres. Il convient de remarquer que certains $H^{(2)}_{\mu\nu}$ peuvent être nuls sans que les λ correspondants le soient. Par exemple, pour un champ électrique nous prendrons :

$$\lambda_1 = \mathcal{E}_x \qquad \lambda_2 = \mathcal{E}_y \qquad \lambda_3 = \mathcal{E}_z \qquad \boldsymbol{\lambda} = \boldsymbol{\mathcal{E}}$$

$$H_1^{(1)} = -ex \quad H_2^{(1)} = -ey \quad H_3^{(1)} = -ez \quad \boldsymbol{H}^{(1)} = -e\boldsymbol{r}$$

$$H^{(2)}_{\mu\nu} = 0$$

quels que soient μ et ν.

Nous pouvons alors écrire l'énergie perturbée du 1er ordre sous la forme

$$E^{(1)} = \sum_\mu \lambda_\mu E^{(1)}_\mu = \boldsymbol{\lambda E}^{(1)}. \tag{14}$$

(Il convient de ne pas confondre des termes comme $E^{(1)}$ et $\boldsymbol{E}^{(1)}$). En tenant compte de (13-1), l'expression (9) devient

$$E^{(1)} = \sum_\mu \lambda_\mu < 0|H^{(1)}_\mu|0 > \tag{15-1}$$

d'où, en comparant à (14)

$$E^{(1)}_\mu = < 0|H^{(1)}_\mu|0 > \tag{15-2}$$

Il en résulte que l'énergie perturbée du 1er ordre est la somme des énergies dues aux différentes perturbations.

Très souvent, les $E^{(1)}_\mu$ sont nulles : *a*) soit pour des raisons de parité : lorsque $H^{(1)}_\mu$ anticommute avec l'opérateur parité π et que $\psi^{(0)}$ a une parité bien définie ; *b*) soit pour des raisons de réalité : lorsque $H^{(1)}_\mu$ est un opérateur imaginaire pur et $\psi^{(0)}$ une fonction réelle pure. Cette dernière condition est fréquemment réalisée, car la quasi-totalité des molécules possèdent un état fondamental non dégénéré qui peut être décrit par une fonction réelle.

B) Additivité par rapport aux particules composantes. — Nous allons particulariser la fonction d'onde $\psi^{(0)}$ en l'écrivant sous la forme d'un produit de fonctions que nous appellerons des « fonctions partielles », soit :

$$\psi^{(0)} = \sum_{j=1}^{n} \psi_j^{(0)}. \tag{16-1}$$

Les différents $\psi_j^{(0)}$ sont supposées normalisées ; elles peuvent dépendre des variables dynamiques de plusieurs particules, noyaux ou électrons, et leur choix (ainsi que leur nombre n) dépend du mode de description choisi pour la molécule. Par exemple, une fonction partielle décrira le mouvement des noyaux et une autre celui des électrons, si l'on a séparé ces deux mouvements à l'aide du théorème de Born et Oppenheimer. La fonction partielle électronique pourra elle-même être écrite de bien des façons : si l'on utilise la méthode des orbitales moléculaires, on prendra un produit (que nous supposons d'abord non antisymétrisé) de fonctions partielles monoélectriques ; si l'on utilise la méthode des paires (« valence bond method »), on prendra un produit de fonctions partielles biélectroniques $\psi_{RS}^{(0)}$ décrivant une liaison entre deux atomes R et S.

Nous supposerons également que $H^{(1)}$ et $H^{(2)}$ peuvent être mis sous la forme d'une somme « d'opérateurs partiels », soit

$$H^{(1)} = \sum_{j=1}^{n} H_j^{(1)} \tag{16-2}$$

$$H^{(2)} = \sum_j H_j^{(2)}. \tag{16-3}$$

Les opérateurs $H_j^{(1)}$ et $H_j^{(2)}$ agissent uniquement sur les fonctions partielles de même indice j. Cette décomposition est au moins valable pour les perturbations extérieures au système de particules considéré.

A l'aide des définitions précédentes, on obtient

$$E^{(1)} = \sum_j < 0_j|H_j^{(1)}|0_j > = \sum_{j=1}^{n} E_j^{(1)} \tag{17-1}$$

avec

$$E_j^{(1)} = < 0j|H_j^{(1)}|0j >. \tag{17-2}$$

Le ket $|0j >$ est évidemment le « ket partiel » associé à la fonction partielle $\psi_j^{(0)}$. Il ne faut pas confondre les sommations sur j qui portent sur différents groupes de particules, et celles sur μ qui portent sur différents opérateurs.

(17-1) indique que l'énergie perturbée du premier ordre est la somme des énergies perturbées relatives aux divers groupes de particules. Si la fonction partielle $\psi_j^{(0)}$ décrit l'ensemble de toutes les particules identiques du système, par exemple tous les électrons ou tous les noyaux semblables, on trouve facilement que le terme $E_j^{(1)}$ correspondant est additif par rapport à tous les corpuscules de l'ensemble j, et conserve la même valeur que la fonction soit symétrisée ou non dans le cas de bosons, antisymétrisée ou non dans le cas de fermions ; en particulier, pour des électrons décrits par la méthode des orbitales moléculaires, on obtient le même résultat avec un produit antisymétrisé (AP) qu'avec un produit simple (SP).

IV. Calcul variationnel de l'énergie perturbée du second ordre. — A) Expressions générales. — L'expression (10) de $E^{(2)}$ est une fonctionnelle dépendant de la fonction inconnue $\psi^{(1)}$ (ou du ket inconnu $|1>$) et nous devons chercher le minimum de $E^{(2)}$. (Dans ce processus, le dernier terme $< 0|H^{(2)}|0 >$ n'interviendra pas.) Utilisons la représentation q de la mécanique ondulatoire. En explicitant les intégrales de (10), nous obtenons

$$E^{(2)} = \int [\psi^{(1)*} (H^{(0)} - E^{(0)}) \psi^{(1)} + \psi^{(1)*} (H^{(1)} - E^{(1)}) \psi^{(0)} + \psi^{(0)*} (H^{(1)} - E^{(1)}] \psi^{(1)}] \, d\tau.$$

En imposant des variations arbitraires $\delta\psi^{(1)}$ et $\delta\psi^{(1)*}$ aux fonctions $\psi^{(1)}$ et $\psi^{(1)*}$, nous obtenons

$$\delta E^{(2)} = \int [\delta\psi^{(1)*} (H^{(0)} - E^{(0)}) \psi^{(1)} + \psi^{(1)*} (H^{(0)} - E^{(0)}) \delta\psi^{(1)} + \delta\psi^{(1)*} (H^{(1)} - E^{(1)}) \psi^{(0)} + \psi^{(0)*} (H^{(1)} - E^{(1)}) \delta\psi^{(1)}] \, d\tau$$

ou en tenant compte de l'hermiticité de $H^{(0)}$ et $H^{(1)}$

$$\delta E^{(2)} = \int [\delta\psi^{(1)*} (H^{(0)} - E^{(0)}) \psi^{(1)} + \delta\psi^{(1)} (H^{(0)*} - E^{(0)}) \psi^{(1)*} + \delta\psi^{(1)*} (H^{(1)} - E^{(1)}) \psi^{(0)} + \delta\psi^{(1)} (H^{(1)*} - E^{(1)}) \psi^{(0)*}] \, d\tau. \quad (18)$$

Nous voulons avoir $\delta E^{(0)} = 0$ quelles que soient les variations $\delta\psi^{(1)}$ et $\delta\psi^{(1)*}$, ce qui impose à la fonction $\psi^{(1)}$ les deux conditions suivantes, équations d'Euler du problème variationnel considéré, soit

$$(H^{(0)} - E^{(0)}) \psi^{(1)} + (H^{(1)} - E^{(1)}) \psi^{(0)} = 0 \quad (19\text{-}1)$$

$$(H^{(0)*} - E^{(0)}) \psi^{(1)*} + (H^{(1)*} - E^{(1)}) \psi^{(0)*} = 0. \quad (19\text{-}2)$$

Ces deux équations sont complexes conjuguées l'une de l'autre. Dans ce qui suit nous supposerons que l'on a toujours $H^{(0)*} = H^{(0)}$ c'est-à-dire que l'hamiltonien non perturbé est un opérateur réel pur. Des équations (19) nous pouvons déduire immédiatement une relation que nous utiliserons plus loin ; en multipliant (19-1) par $\psi^{(1)*}$, (19-2) par $\psi^{(1)}$ et en intégrant, on obtient

$$< 1|H^{(0)} - E^{(0)}|1 > + < 1|H^{(1)} - E^{(1)}|0 > = 0$$

$$< 1|H^{(0)} - E^{(0)}|1 > + < 0|H^{(1)} - E^{(1)}|1 > = 0$$

d'où l'on déduit

$$< 1|H^{(1)} - E^{(1)}|0 > = < 0|H^{(1)} - E^{(1)}|1 > \quad (20)$$

ce qui prouve que ces éléments matriciels sont réels purs.

Dans les problèmes moléculaires, on pose fréquemment :

$$\psi^{(1)}(x) = f(x) \, \psi^{(0)}(x) \quad (21)$$

ou

$$|1 > = f(x)| \, 0 > \quad (21')$$

en désignant par x l'ensemble des coordonnées (d'espace et de spin) de tous les corpuscules de la molécule. Si l'hamiltonien non perturbé $H^{(0)}$ ne fait pas intervenir les spins, nous aurons simplement

$$\begin{aligned} H^{(0)} \psi^{(1)} &= -\sum_k \frac{h^2}{8\pi^2 m_k} \Delta_k(f\psi^{(0)}) + Vf \psi^{(0)} \\ &= -\sum_k \frac{h^2}{8\pi^2 m_k} [f \Delta_k \psi^{(0)} + \psi^{(0)} \Delta_k f + 2 \, \mathbf{grad}_k f . \mathbf{grad}_k \psi^{(0)}] + Vf \psi^{(0)} \\ &= f H^{(0)} \psi^{(0)} - \sum_k \frac{h^2}{8\pi^2 m_k} [\psi^{(0)} \Delta_k f + 2 \, \mathbf{grad}_k f . \mathbf{grad}_k \psi^{(0)}] \end{aligned}$$

et les équations (19) deviennent

$$(H^{(1)} - E^{(1)}) \psi^{(0)} - \sum_k \frac{h^2}{8\pi^2 m_k} \psi^{(0)} \Delta_k f - \sum_k \frac{h^2}{4\pi^2 m_k} \mathbf{grad}_k \psi^{(0)} . \mathbf{grad}_k f = 0 \quad (22\text{-}1)$$

$$(H^{(1)*} - E^{(1)}) \psi^{(0)*} - \sum_k \frac{h^2}{8\pi^2 m_k} \psi^{(0)*} \Delta_k f^* - \sum_k \frac{h^2}{4\pi^2 m_k} \mathbf{grad}_k \psi^{(0)*} . \mathbf{grad}_k f^* = 0. \quad (22\text{-}2)$$

Si $\psi^{(1)}$ est solution rigoureuse des équations (19), nous pouvons mettre l'énergie perturbée du second ordre sous les différentes formes en utilisant soit (18) et (20), soit (19-1), soit (19-1) et (21).

$$E^{(2)} = < 1|H^{(0)} - E^{(0)}|1 > + 2 < 1|H^{(1)}|0 > + < 0|H^{(2)}|0 > \quad (23\text{-}1)$$

$$= - < 1|H^{(0)} - E^{(0)}|1 > + < 0|H^{(2)}|0 > \quad (23\text{-}2)$$

$$= < 1|H^{(1)}|0 > + < 0|H^{(2)}|0 > \quad (23\text{-}3)$$

$$= < f\psi^{(0)}|H^{(1)}|0 > + < 0|H^{(2)}|0 >. \quad (23\text{-}4)$$

Si l'on utilise seulement une fonction approchée, comportant un certain nombre de paramètres ajustables, il faut utiliser l'expression (23-1) et la minimiser par rapport à ces paramètres.

IV-B) Caractère réel ou imaginaire de $\psi^{(1)}$. Cas particuliers fréquents. — Nous allons utiliser le fait obtenu en (20) que le terme matriciel

$$< 1|H^{(1)} - E^{(1)}|0 > [= < 1|H^{(1)}|0 > \text{ en vertu de (3')}]$$

est réel pur, et étudier particulièrement le cas très fréquent où $\psi^{(0)}$ est réelle pure. Mettons tout d'abord en évidence les parties réelles et imaginaires par les décompositions

$$\psi^{(0)} = \psi^{(0r)} + i \, \psi^{(0i)} \quad (24\text{-}1)$$

$$\psi^{(1)} = \psi^{(1r)} + i \, \psi^{(1i)}. \quad (24\text{-}2)$$

L'élément matriciel en question peut alors être écrit

$$< 1|H^{(1)}|0 > = < 1r|H^{(1)}|0r > + < 1i|H^{(1)}|0i > + i[< 1r|H^{(1)}|0i > - < 1i|H^{(1)}|0r >]. \quad (25)$$

Les termes du 2e membre sont des intégrales calculées sur l'espace de configuration de la molécule et portant sur les parties réelles ou imaginaires des fonctions envisagées. Distinguons maintenant deux cas suivant que $H^{(1)}$ est réel pur ou imaginaire pur. On couvre ainsi toutes les possibilités car un opérateur complexe peut toujours être considéré comme la somme d'un opérateur réel pur et d'un opérateur imaginaire pur.

1. $H^{(1)}$ RÉEL PUR. — $H^{(1)} = H^{(1)*}$.

En utilisant les décompositions (24), nous transformons les équations (19) par addition et soustraction en

$$(H^{(1)} - E^{(1)})\, \psi^{(0r)} + (H^{(0)} - E^{(0)})\, \psi^{(1r)} = 0 \quad (26\text{-}1)$$

$$(H^{(1)} - E^{(1)})\, \psi^{(0i)} + (H^{(0)} - E^{(0)})\, \psi^{(1i)} = 0. \quad (26\text{-}2)$$

Si $\psi^{(0)}$ est réelle pure, le premier terme de(26-2) est nul et l'on prendra $\psi^{(1i)} = 0$, $\psi^{(1)}$ devenant réelle pure.

On peut vérifier que ce choix est nécessaire lorsque l'état non perturbé n'est pas dégénéré ; d'autre part, il est le plus commode lorsque l'état est dégénéré et que néanmoins les diverses fonctions $\psi^{(0)}$ adaptées à la perturbation sont réelles, car la valeur de $< 1|H^{(1)}|0 >$ est indépendante de la forme de $\psi^{(1i)}$ compte tenu que celle-ci ne peut être qu'une combinaison linéaire des $\psi^{(0)}$.

D'autre part on a souvent $E^{(1)} = 0$, éventuellement par un choix convenable de l'origine des coordonnées, de sorte qu'il reste uniquement l'équation portant sur des quantités réelles

$$H^{(1)}\, \psi^{(0)} + (H^{(0)} - E^{(0)})\, \psi^{(1)} = 0 \quad (27)$$

ou, avec la fonction f introduite en (21)

$$H^{(1)}\, \psi^{(0)} - \sum_k \frac{h^2}{8\pi^2 m_k}\, \psi^{(0)}\, \Delta_k f - \sum_k \frac{h^2}{4\pi^2 m_k}\, \mathbf{grad}_k\, \psi^{(0)} . \mathbf{grad}_k f = 0. \quad (27')$$

On peut également envisager directement l'expression (25) qui se réduit à

$$< 1|H^{(1)}|0 > = < 1r|H^{(1)}|0r > - i < 1i|H^{(1)}|0r >$$

et l'on remarquera que cet élément matriciel doit être réel, ce que l'on peut effectivement obtenir en prenant $\psi^{(1)}$ réelle pure.

Si $\psi^{(0)}$ est complexe, ce qui est lié à une dégénérescence, on retrouve, par suite des équations (26), le fait que l'expression (25) est réelle pure ; $\psi^{(1)}$ est généralement complexe et ne peut se réduire à une quantité réelle que si $\psi^{(0i)}$ est fonction propre de $H^{(1)}$ pour la valeur propre $E^{(1)}$.

2. $H^{(1)}$ IMAGINAIRE PUR. — $H^{(1)*} = -H^{(1)}$.

En procédant comme ci-dessus, nous pouvons mettre les équations (19) sous la forme

$$iH^{(1)}\, \psi^{(0i)} - E^{(1)}\, \psi^{(0r)} + (H^{(0)} - E^{(0)})\, \psi^{(1r)} = 0 \quad (28\text{-}1)$$

$$H^{(1)}\, \psi^{(0r)} - iE^{(1)}\, \psi^{(0i)} + i(H^{(0)} - E^{(0)})\, \psi^{(1i)} = 0. \quad (28\text{-}2)$$

La première équation est réelle, la seconde imaginaire.

Si $\psi^{(0)}$ est réelle, on sait déjà que $E^{(1)} = 0$ et on voit facilement à partir de (27-1) qu'il convient ici encore de prendre $\psi^{(1r)} = 0$, c'est-à-dire de choisir une fonction de variation imaginaire pure satisfaisant à l'équation unique (28-2) qui devient

$$H^{(1)}\, \psi^{(0)} + (H^{(0)} - E^{(0)})\, \psi^{(1)} = 0. \quad (29)$$

Si $\psi^{(0)}$ est complexe, on voit que la fonction $\psi^{(1)}$ l'est également. En vertu des équations (28), l'élément matriciel

$$< 1|H^{(1)} - E^{(1)}|0 >$$

est toujours réel comme il se doit, et l'on peut faire des observations analogues à celles indiquées pour $H^{(1)}$ réel.

IV-C) DÉVELOPPEMENT PAR RAPPORT AUX OPÉRATEURS DE PERTURBATION. — Nous allons employer les expressions (13-1) et (13-2) des hamiltoniens perturbateurs et nous écrirons la fonction perturbée du premier ordre sous la forme

$$\psi^{(1)} = \sum_{\mu=1}^{p} \lambda_\mu\, \psi^{(1)}_\mu = \boldsymbol{\lambda\psi}^{(1)} \quad (30)$$

ou, pour les kets correspondants

$$|1 > = \sum_k \lambda_\mu |1, \mu| > = \boldsymbol{\lambda}|\boldsymbol{1} > \quad (30')$$

et l'énergie perturbée du 2e ordre sous la forme

$$E^{(2)} = \sum_{\mu,\nu} \lambda_\mu\, \lambda_\nu\, E^{(2)}_{\mu\nu} = (\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda})\, \vec{\vec{E}}^{(2)}. \quad (31)$$

Les équations d'Euler (19) deviennent

$$(H^{(0)} - E^{(0)})\, \boldsymbol{\lambda\psi}^{(1)} + \boldsymbol{\lambda}(\boldsymbol{H}^{(1)} - \boldsymbol{E}^{(1)})\, \psi^{(0)} = 0$$

$$(H^{(0)} - E^{(0)})\, \boldsymbol{\lambda\psi}^{(1)*} + \boldsymbol{\lambda}(\boldsymbol{H}^{(1)*} - \boldsymbol{E}^{(1)})\, \psi^{(0)*} = 0.$$

(Les λ_μ peuvent toujours être considérés comme réels.) Ces équations doivent être vérifiées quels que soient les paramètres indépendants λ_μ et chacune se sépare en un système de p équations indépendantes déterminant les p fonctions indépendantes $\psi^{(1)}_\mu$, soit

$$(H^{(0)} - E^{(0)})\, \psi^{(1)}_\mu + (H^{(1)}_\mu - E^{(1)}_\mu)\, \psi^{(0)} = 0 \quad (32\text{-}1)$$

$$(H^{(0)} - E^{(0)})\, \psi^{(1)*}_\mu + (H^{(1)*}_\mu - E^{(1)}_\mu)\, \psi^{(0)*} = 0. \quad (32\text{-}2)$$

La formule (10) devient

$$E^{(2)} = (\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda}) . < \boldsymbol{1}| \otimes (H^{(0)} - E^{(0)}|\boldsymbol{1} > + (\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda}) [< \boldsymbol{1}| \otimes \boldsymbol{H}^{(1)}|0 > + < 0|\boldsymbol{H}^{(1)} \otimes |\boldsymbol{1} > + < 0|\overrightarrow{\overrightarrow{H}}^{(2)}|0 >] \quad (33)$$

où nous avons introduit, par exemple, le tenseur

$$< \boldsymbol{1}| \otimes (H^{(0)} - E^{(0)})|\boldsymbol{1} >$$

de composantes

$$< 1\mu|H^{(0)} - E^{(0)}|1\nu >$$

et tenu compte de la relation générale

$$(\boldsymbol{\lambda u})(\boldsymbol{\lambda v}) = \left(\sum_\mu \lambda_\mu u_\mu\right)\left(\sum_\nu \lambda_\nu v_\nu\right) = \sum_{\mu,\nu} \lambda_\mu \lambda_\nu u_\mu v_\nu = (\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda})(\boldsymbol{u} \otimes \boldsymbol{v}).$$

En comparant (31) et (33) on voit immédiatement que

$$\overrightarrow{\overrightarrow{E}}^{(2)} = < \boldsymbol{1}| \otimes (H^{(0)} - E^{(0)})|\boldsymbol{1} > + < \boldsymbol{1}| \otimes \boldsymbol{H}^{(1)}|0 > + < 0|\boldsymbol{H}^{(1)} \otimes |\boldsymbol{1} > + < 0|\overrightarrow{\overrightarrow{H}}^{(2)}|0 >. \quad (34)$$

En remarquant que le tenseur $\overrightarrow{\overrightarrow{E}}^{(2)}$ est symétrique ($E^{(2)}_{\mu\nu} = E^{(2)}_{\nu\mu}$) on peut écrire ses composantes

$$E^{(2)}_{\mu\nu} = < 1\mu|H^{(0)} - E^{(0)}|1\nu > + < 1\mu|H^{(1)}_\nu|0 > + < 1\nu|H^{(1)}_\mu|0 > + < 0|H^{(2)}_{\mu\nu}|0 >. \quad (34')$$

Si les fonctions $\psi^{(1)}_\mu$ et $\psi^{(1)}_\nu$ sont solutions des équations d'Euler « partielles » (32), nous aurons plus simplement d'après (23-2)

$$E^{(2)}_{\mu\nu} = - < 1\mu|H^{(0)} - E^{(0)}|1\nu > + < 0|H^{(2)}_{\mu\nu}|0 >. \quad (34'')$$

Certains des $E^{(2)}_{\mu\nu}$ peuvent être nuls, pour des raisons de symétrie géométrique ou de réalité, en particulier si $\psi^{(0)}$ est réelle, $H^{(1)}_\mu$ réel tandis que $H^{(1)}_\nu$ est imaginaire pur, on sait que $\psi^{(1)}_\mu$ est réelle, $\psi^{(1)}_\nu$ imaginaire, de sorte que le 1er terme de $E^{(2)}_{\mu\nu}$ est nul.

IV-D) Additivité par rapport aux particules composantes. — Nous considérons maintenant le cas où la molécule est décomposée en plusieurs systèmes de particules, c'est-à-dire décrite par la f. o. (16). Nous cherchons une fonction perturbée d'une forme analogue à (16), soit

$$\psi = \sum_{j=1}^{n} \psi_j \quad (35\text{-}1)$$

en prenant pour chaque fonction perturbée partielle, l'expression

$$\psi_j = \psi^{(0)}_j + \varepsilon \psi^{(1)} + \varepsilon^2 \psi^{(2)}_j + \ldots \quad (35\text{-}2)$$

En portant (35-2) dans (35-1), nous obtenons

$$\psi = \prod_j \psi^{(0)}_j + \varepsilon \sum_j \prod_{k \neq j} \psi^{(1)}_j \psi^{(0)}_k + \varepsilon^2 \left[\sum_j \prod_{k \neq j} \psi^{(2)}_j \psi^{(0)}_k + {\sum_{j,k}}' \prod_{l \neq j,k} \psi^{(0)}_l \psi^{(1)}_j \psi^{(1)}_k\right]. \quad (36)$$

En comparant (36) et (2), nous pouvons donc poser

$$\psi^{(1)} = \prod_k \psi^{(0)}_k \left(\sum_j \frac{\psi^{(1)}_j}{\psi^{(0)}_j}\right) = \psi^{(0)} \left(\sum_j \frac{\psi^{(1)}_j}{\psi^{(0)}_j}\right) \quad (37)$$

et il est commode d'écrire, par analogie avec (21)

$$\psi^{(1)}_j = f_j \psi^{(0)}_j \quad (38)$$

d'où immédiatement

$$\psi^{(1)} = \psi^{(0)} \left(\sum_j f_j\right). \quad (37')$$

Conformément aux hypothèse utilisées dans différentes méthodes de la chimie théorique et à la forme (16-1) considérée comme valable pour $\psi^{(0)}$, nous supposons que l'hamiltonien $H^{(0)}$ peut être pratiquement décomposé en hamiltoniens partiels $H^{(0)}$ tels que l'on ait

$$H^{(0)} = \sum H^{(0)}_j \quad (39\text{-}1)$$

$$H^{(0)}_j \psi^{(0)}_j = E^{(0)}_j \psi^{(0)}_j. \quad (39\text{-}2)$$

Il faut bien remarquer que les égalités précédentes ne peuvent être qu'approximatives. Dans ces conditions, l'équation d'Euler (19-1) devient

$$\sum_j [(H^{(0)}_j - E^{(0)}_j) \psi^{(0)} f_j + (H^{(1)}_j - E^{(1)}) \psi^{(0)}] + {\sum_{j,k}}' (H^{(0)}_j - E^{(0)}) \psi^{(0)} f_k = 0$$

et les termes de la seconde somme sont nuls par suite de (39-2). Compte tenu de (16), il reste donc

$$\sum_j \left(\prod_{k \neq j} \psi^{(0)}_k\right) [(H^{(0)}_j - E^{(0)}_j) \psi^{(1)}_j + (H^{(1)}_j - E^{(1)}_j) \psi^{(0)}_j] = 0.$$

Pour que cette équation soit vérifiée, il faut que le soient également les équations partielles

$$(H^{(0)}_j - E^{(0)}_j) \psi^{(1)}_j + (H^{(1)}_j - E^{(1)}_j) \psi^{(0)}_j = 0 \quad (40)$$

comme on le voit en appliquant la méthode de séparation des variables. L'expression (23-4) devient alors

$$E^{(2)} = \sum [< f_j \psi^{(0)}|H^{(1)}_j|0j > + < 0j|H^{(2)}_j|0j >] + {\sum_{j,k}}' < f_j \psi^{(0)}_j|0j > . < 0j|H^{(2)}_j|0k >.$$

Les termes de la deuxième somme sont nuls en vertu d'une relation analogue à (3') valable pour les fonctions partielles $\psi^{(0)}_j$ et $\psi^{(1)}_j$ de sorte que nous obtenons, de manière générale, une somme

d'intégrales portant sur les ensembles partiels de particules, soit

$$E^{(2)} = \sum_j E_j^{(2)} \qquad (41)$$

avec

$$E_j^{(2)} = \langle 1j|H_j^{(1)}|0j\rangle + \langle 0j|H_j^{(2)}|0j\rangle. \qquad (41')$$

Supposons maintenant que nous ayons affaire à un système de n électrons. A partir d'un produit simple (SP) de la forme (35-1), nous obtenons l'additivité suivant (41), avec des énergies individuelles $E_j^{(2)}$ (SP). On sait qu'une meilleure fonction est obtenue en tenant compte du principe de Pauli et en prenant un produit antisymétrique (AP). On verra facilement que la relation d'additivité (41) est encore valable (de manière beaucoup plus formelle et moins pratique) avec des $E_j^{(2)}$ (AP) ; mais en général on a $E_j^{(2)}$ (AP) $\neq E_j^{(2)}$ (SP), car l'équation d'Euler totale n'est plus séparable en équations d'Euler individuelles, portant chacune sur une fonction $\psi_j^{(1)}$. Ce résultat a déjà été constaté dans des calculs sur la polarisabilité électrique [2c] et est corroboré par un récent travail d'Allen appliquant la méthode de Hartree-Fock aux systèmes perturbés [6].

V. **Calcul de l'énergie du 3e ordre.** — V-A) Expressions générales. — Reprenons l'expression (11), soit

$$\begin{aligned} E^{(3)} = {} & \langle 1|H^{(0)} - E^{(0)}|2\rangle + \langle 2|H^{(0)} - E^{(0)}|1\rangle \\ & + \langle 0|H^{(1)} - E^{(1)}|2\rangle + \langle 2|H^{(1)} - E^{(1)}|0\rangle \\ & + \langle 1|H^{(1)} - E^{(1)}|1\rangle + \langle 0|H^{(2)}|1\rangle + \langle 1|H^{(2)}|0\rangle \end{aligned}$$

la fonction $\psi^{(1)}$ a été déterminée par le calcul relatif au 2e ordre. Quelle que soit $\psi^{(2)}$, les termes de la première ligne sont nuls en vertu des équations (19) et il reste seulement

$$\begin{aligned} E^{(3)} = {} & \langle 1|H^{(1)} - E^{(1)}|1\rangle \\ & + \langle 0|H^{(2)}|1\rangle + \langle 1|H^{(2)}|0\rangle. \qquad (42) \end{aligned}$$

L'énergie perturbée du 3e ordre ne dépend donc que des fonctions $\psi^{(1)}$ et $\psi^{(0)}$.

V-B) Développement par rapport aux opérateurs de perturbation. — En tenant compte des formes (13-1), (13-2) et (30), nous pouvons écrire

$$\begin{aligned} E^{(3)} = {} & (\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda}) [\langle \boldsymbol{1}| \otimes (\boldsymbol{H}^{(1)} - \boldsymbol{E}^{(1)}) \otimes |\boldsymbol{1}\rangle \\ & + \langle 0|\overrightarrow{\overrightarrow{H}}^{(2)} \otimes |\boldsymbol{1}\rangle + \langle \boldsymbol{1}| \otimes \overrightarrow{\overrightarrow{H}}^{(2)}|0\rangle] \\ = {} & (\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda}) \boldsymbol{E}^{(3)} \qquad (43) \end{aligned}$$

en convenant que le symbole $\boldsymbol{E}^{(n)}$ représente un tenseur de rang n en même temps qu'il indique l'ordre de la perturbation. Ici $\boldsymbol{E}^{(3)}$ désigne le tenseur de rang 3 :

$$\begin{aligned} \boldsymbol{E}^{(3)} = {} & \langle \boldsymbol{1}| \otimes (\boldsymbol{H}^{(1)} - \boldsymbol{E}^{(1)}) \otimes |\boldsymbol{1}\rangle \\ & + \langle 0|\overrightarrow{\overrightarrow{H}}^{(2)} \otimes |\boldsymbol{1}\rangle + \langle \boldsymbol{1}| \otimes \overrightarrow{\overrightarrow{H}}^{(2)}|0\rangle \qquad (44) \end{aligned}$$

de composantes

$$\begin{aligned} E_{\mu\nu\rho}^{(3)} = {} & \langle 1\mu|H_\nu^{(1)} - E_\nu^{(1)}|1\rho\rangle \\ & + \langle 0|H_{\mu\nu}^{(2)}|1\rho\rangle + \langle 1\mu|H_{\nu\rho}^{(2)}|0\rangle. \qquad (44') \end{aligned}$$

Il convient d'ailleurs de remarquer que ces composantes n'interviennent dans (43) que par des combinaisons symétriques en μ, ν et ρ.

Certains de ces termes pourront être nuls par suite des symétries géométriques ou du caractère réel imaginaire des opérateurs et des fonctions ; en particulier, si $\psi^{(0)}$ est réelle et si 1 ou 3 des indices μ, ν, ρ correspondent à des opérateurs $H_\alpha^{(1)}$ imaginaires ($\alpha = \mu$, ν ou ρ), donc à des fonctions $\psi_\alpha^{(1)}$ imaginaires, la somme des 6 termes $E_{\mu'\nu'\rho'}^{(3)}$ sera nulle (μ', ν', ρ' permutation de μ, ν, ρ).

V-C) Additivité par rapport aux particules composantes. — En tenant compte de la forme (16-1) de $\psi^{(0)}$ et des définitions (16-2) et (16-3), (42) devient

$$\begin{aligned} E^{(3)} = {} & \sum_{j,k,l} \langle f_j\,\psi^{(0)}|H_k^{(1)} - E_k^{(1)}|f_e\,\psi^{(0)}\rangle \\ & + \sum_{j,k} [\langle 0|H_k^{(2)}|f_j\,\psi^{(0)}\rangle + \langle f_j\,\psi^{(0)}|H_k^{(2)}|0\rangle] \\ = {} & \sum_j [\langle 1j|H_j^{(1)} - E_j^{(1)}|1j\rangle + \langle 0j|H_j^{(2)}||1j\rangle \\ & + \langle 1j|H_j^{(2)}|0j\rangle] \\ & + \sum_{j,k}{}' [\langle 1j|1j\rangle \langle 0k|H_k^{(1)} - E_k^{(1)}|0k\rangle \\ & \quad + \langle 1j|0j\rangle \langle 0k|H_k^{(1)}|1k\rangle \\ & \quad + \langle 0j|1j\rangle \langle 1k|H_k^{(1)}|0k\rangle \\ & \quad + \langle 0j|1j\rangle \langle 0k|H_k^{(2)} - E_k^{(2)}|0k\rangle \\ & \quad + \langle 1j|0j\rangle \langle 0k|H_k^{(2)} - E_k^{(2)}|0k\rangle \\ & + \sum_{j,k,l}{}'' \langle 1j|0j\rangle \langle 0k|H_k^{(1)} - E_k^{(1)}|0k\rangle \langle 0l|1l\rangle. \end{aligned}$$

Les 2e et 3e sommes s'annulent soit par suite de (17-2), soit par suite des conditions

$$\langle 1j|0j\rangle = 0.$$

Donc $E^{(3)}$ est additive par rapport aux ensembles partiels de particules et nous pouvons écrire

$$E^{(3)} = \sum_{j=1}^{n} E_j^{(3)} \qquad (45)$$

avec

$$\begin{aligned} E_j^{(3)} = {} & \langle 1j|H_j^{(1)} - E_j^{(1)}|1j\rangle \\ & + \langle 0j|H_j^{(2)}|1j\rangle + \langle 1j|H_j^{(2)}|0j\rangle. \qquad (45') \end{aligned}$$

Si nous tenons compte de l'additivité par rapport aux opérateurs, nous pourrons écrire des termes de la forme

$$E^{(3)}_{\mu\nu\rho,j} = \langle 1, \mu, j | H^{(1)}_{\nu,j} - E^{(1)}_{\nu,j} | 1, \rho, j \rangle + \langle 0j | H^{(2)}_{\mu\nu,j} | 1, \rho, j \rangle + \langle 1, \mu, j | H^{(2)}_{\nu\rho,j} | 0j \rangle. \quad (45'')$$

VI. Calcul variationnel de l'énergie du 4e ordre.

— VI-A) Expressions générales. — Partons de l'expression (12)

$$\begin{aligned} E^{(4)} = & \langle 1 | H^{(0)} - E^{(0)} | 3 \rangle + \langle 0 | H^{(1)} - E^{(1)} | 3 \rangle \\ & + \langle 3 | H^{(0)} - E^{(0)} | 1 \rangle + \langle 3 | H^{(1)} - E^{(1)} | 0 \rangle \\ & + \langle 2 | H^{(0)} - E^{(0)} | 2 \rangle + \langle 1 | H^{(1)} - E^{(1)} | 2 \rangle \\ & + \langle 0 | H^{(2)} - E^{(2)} | 2 \rangle + \langle 2 | H^{(1)} - E^{(1)} | 1 \rangle \\ & + \langle 2 | H^{(2)} - E^{(2)} | 0 \rangle + \langle 1 | H^{(2)} - E^{(2)} | 1 \rangle \\ & - E^{(3)} (\langle 0 | 1 \rangle + \langle 1 | 0 \rangle). \end{aligned}$$

La première ligne est nulle si $\psi^{(1)}$ vérifie les équations d'Euler (19) ; il en est de même du dernier terme par suite de la normalisation. La seconde ligne dépend de $\psi^{(2)}$ et les conditions de minimum donnent les deux équations conjuguées :

$$(H^{(0)} - E^{(0)}) \psi^{(2)*} + (H^{(1)*} - E^{(1)}) \psi^{(1)*} + (H^{(2)*} - E^{(2)}) \psi^{(0)*} = 0 \quad (46\text{-}1)$$

$$(H^{(0)} - E^{(0)}) \psi^{(0)} + (H^{(1)} - E^{(1)}) \psi^{(1)} + (H^{(2)} - E^{(2)}) \psi^{(0)} = 0. \quad (46\text{-}2)$$

Si $\psi^{(2)}$ vérifie ces équations, il reste simplement

$$E^{(4)} = - \langle 2 | H^{(0)} - E^{(0)} | 2 \rangle + \langle 1 | H^{(2)} - E^{(2)} | 1 \rangle. \quad (47)$$

L'énergie perturbée du 4e ordre ne dépendra que des fonctions $\psi^{(1)}$ et $\psi^{(2)}$.

VI-B) Développement par rapport aux opérateurs de perturbation. — Par une décomposition analogue à celle utilisée pour $\psi^{(1)}$, nous aurons

$$\psi^{(2)} = \sum_{\mu,\nu=1}^{p} \lambda_\mu \lambda_\nu \psi^{(2)}_{\mu\nu} = (\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda}) \overrightarrow{\overrightarrow{\psi^{(2)}}} \quad (48)$$

ou encore

$$|2\rangle = \sum_{\mu,\nu} \lambda_\mu \lambda_\nu | 2, \mu\nu \rangle = (\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda}) | \overrightarrow{\overrightarrow{2}} \rangle. \quad (48')$$

En tenant compte de (13-1), (13-2) et (30), nous déduirons de (46) une série d'équations qui déterminent, indépendamment les unes des autres, les composantes $\psi^{(2)}_{\mu\nu}$

$$(H^{(0)} - E^{(0)}) \psi^{(2)}_{\mu\nu} + (H^{(1)}_\nu - E^{(1)}_\nu) \psi^{(1)}_\mu + (H^{(2)}_{\mu\nu} - E^{(2)}_{\mu\nu}) \psi^{(0)} = 0 \quad (49)$$

ou encore puisqu'on peut prendre une fonction $\psi^{(2)}_{\mu\nu}$ symétrique en μ et ν

$$(H^{(0)} - E^{(0)}) \psi^{(2)}_{\mu\nu} + \frac{1}{2} (H^{(1)}_\mu - E^{(1)}_\mu) \psi^{(1)}_\nu + \frac{1}{2} (H^{(1)}_\nu - E^{(1)}_\nu) \psi^{(1)}_\mu + (H^{(2)}_{\mu\nu} - E^{(2)}_{\mu\nu}) \psi^{(0)} = 0. \quad (49')$$

Quant à l'énergie $E^{(4)}$, elle peut, avec cette notation être mise sous la forme

$$\begin{aligned} E^{(4)} = & (\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda}) \left[- \langle \overrightarrow{\overrightarrow{2}} | \otimes (H^{(0)} - E^{(0)}) | \overrightarrow{\overrightarrow{2}} \rangle + \langle \boldsymbol{1} | \otimes (\overrightarrow{\overrightarrow{H^{(2)}}} - \overrightarrow{\overrightarrow{E^{(2)}}}) | \otimes | \boldsymbol{1} \rangle \right] \\ = & (\boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda} \otimes \boldsymbol{\lambda}) \boldsymbol{E}^{(4)} \end{aligned} \quad (54)$$

$\boldsymbol{E}^{(4)}$ est un tenseur du 4e rang ; ses composantes sont

$$E^{(4)}_{\mu\nu\rho\sigma} = - \langle 2, \mu\nu | H^{(0)} - E^{(0)} | 2, \rho\sigma \rangle + \langle 1\mu | H^{(2)}_{\nu\rho} - E^{(2)}_{\nu\rho} | 1\sigma \rangle. \quad (50')$$

Lorsque $\psi^{(0)}$ est réelle, on voit facilement, à partir de l'équation d'Euler (49') que $\psi^{(2)}$ doit être prise réelle pure si $H^{(1)}_\mu$ et $H^{(1)}_\nu$ ont le même caractère de réalité, et qu'elle doit être imaginaire pure dans le cas contraire ; en outre, si un nombre impair des indices μ, ν, ρ, σ correspond à un opérateur $H^{(1)}$ imaginaire pur, la somme des 24 termes $E^{(4)}_{\mu'\nu'\rho'\sigma'}$ est nulle (μ', ν', ρ', σ' permutation de μ, ν, ρ, σ).

On peut également faire, au sujet des symétries géométriques, le même genre de remarque pour $E^{(4)}$ que pour $E^{(3)}$.

VI-C) Additivité par rapport aux particules composantes. — La fonction d'onde non perturbée étant sous la forme (16-1), les opérateurs sous les formes (16-2) et (16-3), nous avons défini f par la relation (21). De même, en égalant à $\psi^{(2)}$ le terme en ε^2 de (36), nous définirons la fonction g telle que

$$\psi^{(2)} = g \psi^{(0)} = \sum_j \prod_{k \neq j} \psi^{(2)}_j \psi^{(0)}_k + \sum_{j,k}{}' \prod_{l \neq j,k} \psi^{(0)}_l \psi^{(1)}_j \psi^{(1)}_k \quad (51)$$

$$= \psi^{(0)} \sum_j \frac{\psi^{(2)}_j}{\psi^{(0)}_j} + \psi^{(0)} \sum_{j,k}{}' \frac{\psi^{(1)}_j}{\psi^{(0)}_j} \cdot \frac{\psi^{(1)}_k}{\psi^{(0)}_k}. \quad (51')$$

Si nous posions, de manière analogue à (38), pour chaque groupe j de particules

$$\psi^{(2)}_j = g_j \psi^{(0)}_j \quad (51'')$$

il viendrait

$$\psi^{(2)} = \psi^{(0)} \left[\sum_j g_j + \sum_{j,k}{}' f_j f_k \right] \quad (52)$$

ou, en comparant (51') et (52)

$$g = \sum_j g_j + \sum_{j,k}{}' f_j f_k. \quad (53)$$

La fonction g ne pourrait être considérée comme additive. En réalité, le développement qui suit montre qu'il est équivalent de prendre la fonction additive

$$g = \sum_j g_j \qquad (53')$$

$$\psi^{(2)} = \sum_j \psi_j^{(2)} \qquad (53'')$$

puisque chaque g_j obéit alors à la même équation d'Euler et que l'on aboutit aux mêmes formules qu'avec le choix (53) que nous utilisons ci-dessous.

Remarquons en passant que les conditions de normalisation (3), (4) ou (3'), (4'), écrites pour les fonctions globales $\psi^{(1)}$ et $\psi^{(2)}$ peuvent être également appliquées respectivement aux fonctions $\psi_\mu^{(1)}$, $\psi_{\mu\nu}^{(2)}$ ou $\psi_j^{(1)}$, $\psi_j^{(2)}$.

L'équation d'Euler (46-2) peut s'écrire, à l'aide de (53)

$$\sum_{i,j}\Big[(H_i^{(0)} - E_i^{(0)})\,\psi^{(0)}\Big(g_j + f_j {\sum_{k\neq j}}' f_k\Big) + (H_i^{(1)} - E_i^{(1)})\,\psi^{(0)} f_j + (H_i^{(2)} - E_i^{(2)})\,\psi^{(0)} = 0$$

ou encore, en séparant les termes pour lesquels i et j sont égaux

$$\sum \Big[(H_i^{(0)} - E_i^{(0)})\,\psi^{(0)}\Big(g_i + f_i {\sum_k}' f_k\Big) + (H_i^{(1)} - E_i^{(1)})\,\psi^{(0)} f_i + (H_i^{(2)} - E_i^{(2)})\,\psi^{(0)}\Big]$$
$$+ {\sum_{i,j}}'\Big[(H_i^{(0)} - E_i^{(0)})\,\psi^{(0)}\Big(g + f_j {\sum_k}' f_k\Big) + (H_i^{(1)} - E_i^{(1)})\,\psi^{(0)} f_j\Big] = 0.$$

Les termes de la seconde ligne sont nuls en vertu de (39-2) et (40) supposées vérifiées. En multipliant scalairement les termes de la première ligne par $\prod_{j\neq i} \psi_j^{(0)}$ et en tenant compte des conditions de normalisation, on obtient l'équation déterminant la fonction partielle g_i, soit

$$(H_i^{(0)} - E_i^{(0)})\,\psi_i^{(0)} g_i + (H_i^{(1)} - E_i^{(1)})\,\psi_i^{(0)} f_i + (H_i^{(2)} - E_i^{(2)})\,\psi_i^{(0)} = 0 \qquad (54)$$

ou

$$(H_i^{(0)} - E_i^{(0)})\,\psi_i^{(2)} + (H_i^{(1)} - E_i^{(1)})\,\psi_i^{(1)} + (H_i^{(2)} - E_i^{(2)})\,\psi_i^{(0)} = 0 \qquad (54')$$

de forme analogue à (45).

En tenant compte de (38) et (52), nous pouvons mettre $E^{(4)}$ sous la forme

$$E^{(4)} = \sum_{j,k,l=1}^{n}\Big[< \psi^{(0)} f_j | H_k^{(2)} - E_k^{(2)} | \psi^{(0)} f_e > - < \psi^{(0)}\Big(g_j + f_j \sum_{m\neq j} f_m\Big) | H_k^{(0)} - E_k^{(0)} | \psi^{(0)}\Big(g_l + f_l \sum_{q\neq l} f_q\Big) > \Big].$$

En utilisant les conditions de normalisation, l'équation de Schrödinger partielle (39-2) et en opérant comme pour $E^{(3)}$, on obtient la nouvelle expression

$$E^{(4)} = \sum_j \Big[< 1j | H_j^{(2)} - E_j^{(2)} | 1j > - < 2j | H_j^{(0)} - E_j^{(0)} | 2j > + {\sum_{j,k}}' < 1j|1j > [< 0k | H_k^{(2)} - E_k^{(2)} | 0k > - < 1k | H_k^{(0)} - E_k^{(0)} | 1k >].$$

En multipliant scalairement l'équation d'Euler (40) par $\psi_j^{(1)}$, l'équation d'Euler (54') par $\psi_j^{(0)}$, et en retranchant les deux expressions obtenues, on trouve que :

$$< 0j | H_j^{(2)} - E_j^{(2)} | 0j > - < 1j | H_j^{(0)} - E_j^{(0)} | 1j > = 0$$

c'est-à-dire que l'on peut écrire pour $E^{(4)}$

$$E^{(4)} = \sum_{j=1}^{n} E_j^{(4)} \qquad (55)$$

avec

$$E_j^{(4)} = < 1j | H_j^{(2)} - E_j^{(2)} | 1j > - < 2j | H_j^{(0)} - E_j^{(0)} | 2j >. \qquad (55')$$

L'énergie du 4e ordre, comme celles des ordres inférieurs, est additive par rapport aux différents groupes j de particules.

VII. **Remarques finales.** — Résumons rapidement les principaux résultats du formalisme général exposé ci-dessus. Développant l'énergie et la fonction d'onde du système étudié en série des paramètres de perturbation, nous avons obtenu les équations d'Euler (19) et (46) qui déterminent les fonctions perturbées du 1er et du 2e ordres. Il convient d'ailleurs de remarquer que ces équations sont identiques à celles de la théorie des perturbations [7] ; notre méthode est donc soumise aux mêmes réserves quant à la convergence des expressions obtenues.

En outre, nous n'avons pas, la plupart du temps, mentionné explicitement le fait que $\psi^{(0)}$ peut correspondre à un état dégénéré ; le problème est alors posé de savoir de quelle manière il convient de lever la dégénérescence, en utilisant de préférence la perturbation totale, ou éventuellement la perturbation la plus intense.

Nous avons également obtenu les expressions donnant les énergies perturbées jusqu'au 4e ordre. Les équations et les expressions dont il est question peuvent d'ailleurs se rapporter soit à la perturbation totale, soit aux perturbations partielles suivant lesquelles on peut décomposer la perturbation totale ; dans ce dernier cas, les expressions des énergies font apparaître, à partir de l'ordre 2, des termes « croisés », c'est-à-dire correspondant à

des interactions possibles entre les différents opérateurs perturbateurs. Ceux-ci d'ailleurs peuvent correspondre à des ordres de grandeur expérimentaux différents, que notre méthode abstraite ne met pas en évidence ; c'est seulement dans des applications précises que l'on devra s'en préoccuper. Il paraît particulièrement intéressant de noter que l'énergie perturbée du 3e ordre $E^{(3)}$ est calculable à partir de $\psi^{(0)}$ et $\psi^{(1)}$, et l'énergie perturbée du 4e ordre $E^{(4)}$ à partir de $\psi^{(1)}$ et $\psi^{(2)}$ seulement [10].

D'autre part, moyennant certaines hypothèses simplificatrices sur la f. o. totale, on peut séparer les équations d'Euler en équations portant sur des groupes de particules (éventuellement, sur une seule particule) et les énergies obtenues sont additives par rapport aux différents groupes de particules ainsi distingués. Nous l'avons établi assez longuement, mais nous pourrions nous contenter de remarquer qu'il s'agit là d'une conséquence bien connue de la forme sous laquelle, grâce à diverses hypothèses, nous avons écrit l'hamiltonien perturbé total, soit

$$H = \sum_{j=1}^{n} H_j.$$

Dans ces conditions, une f. o. perturbée peut être écrite sous la forme

$$\psi = \prod_j \psi_j$$

avec

$$H_j \psi_j = E_j \psi_j$$

et

$$E = \sum_j E_j.$$

Les divers développements, caractéristiques de la méthode des perturbations, peuvent alors être introduits à propos de chaque indice j et conduisent aux résultats obtenus plus haut.

Remarquons, pour finir, que les grandeurs calculées dans cet article, sont des grandeurs microscopiques, se rapportant à une molécule. Pour obtenir des grandeurs macroscopiques, il est nécessaire d'effectuer une moyenne statistique sur tous les états de la molécule et sur toutes ses orientations. On peut trouver des indications sur cette question dans l'ouvrage de Van Vleck [8] ou dans [9].

Manuscrit reçu le 21 septembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Gans (R.) et Mrowka (B.), *Kônigsberger Gelehrte Gesellschaft Nachr.*, 1935, **12**, 1.
[2] a) Slater (J. C.) et Kirkwood (J. G.), *Phys. Rev.*, 1931, **37**, 682.
b) Guy (J.) et Harrand (M.), *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 616 et 716.
c) Abbott (J. A.) et Bolton (H. C.), *Proc. Roy. Soc.*, 1953, A **216**, 477.
[3] a) Tillieu (J.) et Guy (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1954, **239**, 1203 et 1283 ; *J. Chem. Phys.*, 1956, **24**, 1117.
b) Tillieu (J.), *Ann. Physique*, 1957, **2**, 471 et 631.
[4] a) Das (T. P.) et Bersohn (R.), *Phys. Rev.*, 1956, **104**, 849 ; *Phys. Rev.*, 1959, **115**, 897.
b) Stephen (M. J.), *Proc. Roy. Soc.*, A, 1957, **242**, 264 et 274.
[5] a) Coulson (C. A.), Maccoll (A.) et Sutton (L. E.), *Trans. Farad. Soc.*, 1952, **48**, 106.
b) Buckingham (A. D.) et Pople (J. A.), *Proc. Phys. Soc.*, 1955, A **68**, 905.
c) Buckingham (A. D.) et Pople (J. A.), *Proc. Phys. Soc.*, 1956, B **69**, 1133.
d) Buckingham (A. D.), *Proc. Phys. Soc.*, 1957, B **70**, 753.
e) Buckingham (A. D.), *Quart. Rev.*, 1959, **13**, 183.
[6] Allen (L. C.), *Phys. Rev.*, 1960, **118**, 167.
[7] Cf. par exemple Kramers (H. A.), Quantum Mechanics (North Holland Publ. Co), 1956, 188 sq. ou Messiah (A.), Mécanique quantique (Dunod), 1956, tome II, p. 586 sq.
[8] Van Vleck (J. H.), The theory of electric and magnetic susceptibilities (Oxford, Univ. Press), 1932.
[9] Andrews (A. L.) et Buckingham (A. D.), *Mol. Phys.*, 1960, **3**, 183.
[10] Pour une généralisation de ce résultat, cf. Dupont-Bourdelet (F.), Tillieu (J.) et Guy (S.), *J. Physique Rad.* 1960, **21**, 776.

RÉSONANCE FERROMAGNÉTIQUE DANS UN ALLIAGE Fe-Ni SOUS FORME DE COUCHES MINCES

Par A. VAN ITTERBEEK, J. SMITS, G. FORREZ et J. WITTERS,
Institut voor Lage Temperaturen en Technische Fysica, Leuven (Belgie).

Résumé. — Utilisant un spectromètre à ondes centimétriques nous avons étudié les raies de résonance de plusieurs films obtenus par évaporation du permalloy C, sous vide, sur un support en verre. Le facteur g et l'induction sont calculés à partir des grandeurs mesurées. On a observé l'influence d'un traitement à haute température sur les facteurs suivants : la forme de la raie, la valeur du champ magnétique de résonance et la valeur de l'induction.

Abstract. — Using a microwave spectrometer we have studied the ferromagnetic resonance of films, obtained by vacuum evaporation Permalloy C, on a glass layer. The g-factor and the induction are calculated from the measurements. The influence of annealing is studied on the following factors : the lineshape, the value of the resonance field and the value of the induction.

1. **Introduction.** — Poursuivant nos recherches sur la résonance ferromagnétique de couches minces dont les premiers résultats furent publiés récemment dans ce même journal [1] nous avons perfectionné notre appareillage de sorte que la détermination de la valeur du champ de résonance est plus précise. Ceci nous a permis de calculer les valeurs du facteur g et de l'induction pour les différentes couches. Dans nos mesures antérieures nous avions observé l'apparition de raies doubles de résonance. Dans le présent travail nous en avons étudié les causes.

Les films sont obtenus par évaporation du permalloy C, mis à notre disposition par le « Vacuum Schmelze Aktiengesellschaft » de Hanau (Allemagne). Après une première mesure, les films sont soumis à un échauffement de 300 °C à 500 °C pendant des temps différents. Ceci se fait également sous vide. Les mesures faites après ce traitement nous donnent une indication importante concernant l'influence de cet échauffement sur les propriétés magnétiques de l'alliage.

2. **Dispositif expérimental.** — La figure 1 représente le schéma du dispositif expérimental. Le klystron fournit une fréquence de 9 230 MHz, stabilisée par un stabilisateur IF de Pound dont l'oscillateur à 9,5 MHz est piloté par un crystal thermostatisé. Après détection le signal de basse fréquence (64 Hz) est appliqué à l'entrée d'un amplificateur sélectif de Bruel et Kjaer, qui précède un détecteur de phase.

Le champ magnétique constant (H_c) est livré par un électro-aimant Oerlikon à basse résistance, alimenté par une dynamo, dont l'excitation provient d'une deuxième dynamo. Celle-ci est placée sur le même axe et nous en réglons le courant d'excitation au moyen d'un hélipot de 200 ohms et 40 tours.

La disposition est telle que H_c est perpendiculaire au champ magnétique HF. Le champ alternatif (h_r cos Ωt) de modulation est livré par un

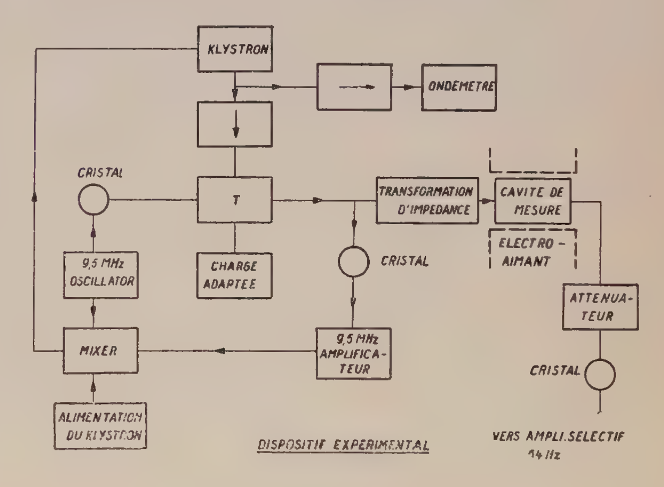


Fig. 1.

alternateur de 64 Hz. Les films sont toujours placés parallèlement au champ magnétique HF, tandis que l'orientation par rapport au champ magnétique constant est variable. L'erreur relative des mesures est de 3 %. Elle provient essentiellement de l'incertitude de la relation entre le courant et le champ magnétique produit par l'électro-aimant.

3. **Les échantillons.** — Les couches métalliques sont déposées dans un appareil construit au laboratoire et qui fut décrit antérieurement [2]. La pompe à diffusion fournit un vide de 10^{-6} mm Hg ; pendant l'évaporation, le vide est supérieur à 10^{-5} mm Hg. Une lamelle en verre sert de support. Elle a les dimensions suivantes : $15 \times 3 \times 0{,}6$ mm^3.

L'épaisseur des films est déterminée par la méthode de Tolansky. Elle varie entre 1 000 et 2 160 Å, ce qui correspond donc à une quantité de métal de 40 à 85 microgrammes.

Les résultats. — 1. Valeur du champ de résonance. — Le tableau I donne les résultats expérimentaux quant au champ magnétique de résonance dans deux orientations du film : H_1 est le champ de résonance pour la position parallèle au champ magnétique constant, H_2 pour la position perpendiculaire.

TABLEAU I

Film n°	H_1 (Œ)	H_2 (Œ)	Épaisseur (angström)
1	1 042	10 923	2 160
2	1 011	11 108	2 160
3	1 018	11 065	2 160
4	1 068	10 915	2 160
5	1 054	10 865	2 160
6	998	10 580	— (*)
7	1 004	10 686	— (*)
8	999	10 789	— (*)
9	1 076	— (**)	1 030
10	1 014	—	1 000
11	1 006	—	1 000
12	1 023	—	1 000
13	1 073	—	1 030
14	1 109	—	1 030

(*) Ces films furent oxydés pendant le traitement à haute température et il était donc devenu impossible d'en déterminer l'épaisseur. Une estimation basée sur la quantité de métal évaporé a donné : 1 000 Å.

(**) La signal est trop faible pour déterminer la valeur du champ de résonance.

Les valeurs du champ magnétique de résonance sont données par les deux conditions de résonance [3] correspondant aux deux orientations (H_c est suivant l'axe z, qui correspond à l'orientation du champ magnétique constant).

$$\omega = \gamma \sqrt{H_1(H_1 + 4\pi M_z)} \quad (1)$$

$$\omega = \gamma(H_2 - 4\pi M_z) \quad (2)$$

$\omega/2\pi = \nu$: fréquence correspondante à une absorption maximale ;

M_z : magnétisation maximum dans la direction du champ magnétique constant H_1 (resp. H_2).

La dispersion des résultats dépasse la précision des mesures et doit donc être attribuée à des différences dans la structure des films.

Dans le cas où il n'y a pas de raison spéciale qui donne lieu à une déformation de la raie, sa largeur mesurée entre les points d'inflection est de 50 Œ. Pour un film de fer pur, que nous avons mesuré pour comparaison cette largeur est de 350 Œ.

2. Calcul de g et de $4\pi M_s$. — A partir des deux valeurs du champ magnétique H_1 et H_2, on peut calculer g et $4\pi M_s$ au moyen des formules suivantes :

$$4\pi M_s = \frac{H_1 + 2H_2 - \sqrt{5H_1^2 + 4H_1 H_2}}{2} \quad (3)$$

$$\gamma = \omega/(H_2 - 4\pi M_s) = ge/2mc \quad (4)$$

g : représente comme d'habitude le facteur de Landé ;

γ : rapport gyromagnétique.

On obtient ces formules en éliminant ω entre les formules (1) et (2), sous condition que la magnétisation M_z atteint, dans les deux cas, sa valeur de saturation M_s, ce qui est certainement vrai. Pour le calcul nous avons pris les valeurs des constantes physiques suivantes [4] :

Le magnéton de Bohr :

$$\beta = \frac{e\hbar}{2mc} = 0{,}9271 \times 10^{-20} \text{ erg/Œrsted}$$

$$\hbar = 1{,}0542 \times 10^{-27} \text{ erg.seconde}$$

de sorte que

$$e/2mc = 0{,}8794 \times 10^{7} \text{ Œ}^{-1}.\text{s}^{-1}$$

La fréquence est :

9 227 Mhz

donc :

$$\omega = 57\,975 \times 10^{6} \text{ s}^{-1}.$$

Le résultat de ces calculs est donné dans le tableau II.

TABLEAU II

Film n°	$4\pi M_s$ (Œ)	g
1	7 875	2,16
2	0 077	2,18
3	8 030	2,17
4	7 832	2,14
5	7 805	2,15
6	7 644	2,24
7	7 725	2,23
8	7 820	2,22

La valeur de g correspond aux valeurs données dans la littérature (en moyenne g varie entre 2,07 et 2,20) [4], ce qui confirme la fidélité de nos mesures en tenant compte des limites des erreurs d'observation. Si l'on compare les valeurs de $4\pi M_s$ ou B_s aux données disponibles pour les alliages Fe-Ni ($\pm$ 8 700 → $\pm$ 10 800) [5], on remarque des

différences. Ces différences doivent être attribuées à des défauts de structure et à des tensions dans les films. Ce sont ces facteurs qui, entre autres, ont une influence sur B_s.

3. Influence du traitement a haute température. — Le traitement à haute température que l'on opère pour obtenir les alliages dits « permalloy » a nettement pour but d'annihiler les défauts et d'augmenter ainsi la valeur de B_s. Ceci est confirmé expérimentalement, comme montre le tableau III.

TABLEAU III

Film n°	Traitement	H_1 (Œ)	H_2 (Œ)	$4\pi M_s$ (Œ)	g
1	7 h à 500 °C	798	13 882	10 835	1,16
2	7 h à 370 °C	868	12 763	9 732	2,17
3	7 h à 500 °C	799	13 666	10 642	2,18
4	7 h à 500 °C	817	13 513	10 475	2,17
5	14 h à 500 °C	805	13 659	10 625	2,15
6	2 h à 350 °C	966	11 286	8 328	2,23

On remarque que les valeurs ainsi obtenues pour $4\pi M_s$ se rapprochent d'autant plus de celles du permalloy que la température est plus haute et que la durée du traitement est plus longue.

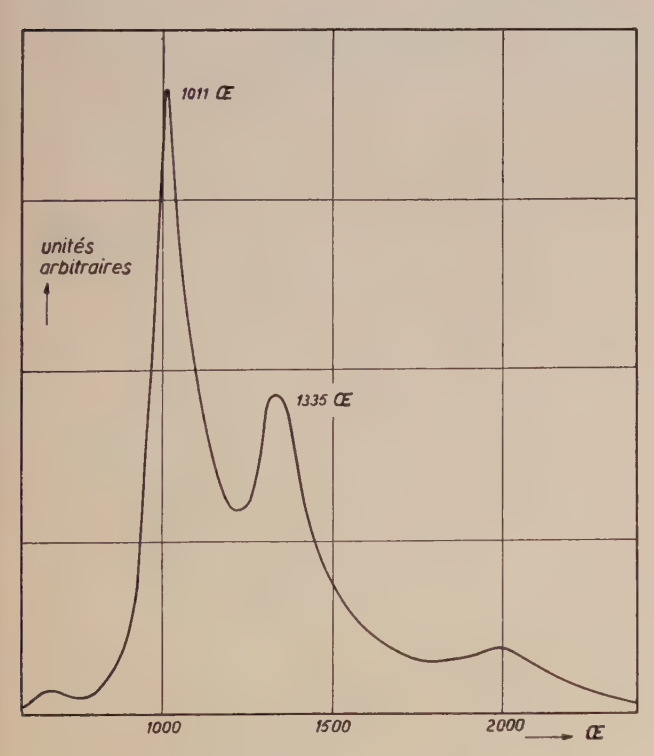


Fig. 2. — Spectre d'absorption d'ondes centimétriques dans un film de permalloy sur un support en verre ; épaisseur du film : 2 160 Å).

4. Anisotropie. — Quand l'état de tension n'est pas le même à travers tout le film, ceci peut donner lieu à des conditions de résonance différentes pour la surface libre du film et pour celle qui est en contact direct avec le support. Une tension peut apparaître par suite de la différence entre les coefficients de dilatation du métal évaporé et du support en verre. D'autres chercheurs ont également trouvé une différence entre la condition de résonance pour la surface libre du film et pour celle qui est attachée au support. Ainsi pour du nickel, Griffiths [6] trouve une différence du champ magnétique de résonance de 400 Œ. Dans nos expériences les deux régions se trouvent en même temps dans le champ magnétique HF et nous observons simultanément deux raies de résonance. Dans la figure 2 ce phénomène est illustré pour le film n° 2. Le maximum le plus élevé correspond, comme montre la valeur du champ magnétique (1 011 Œ), à la résonance principale, tandis que l'autre raie de résonance est causée dans la région en contact direct avec le support. La distance entre les deux maxima est de 324 Œ.

Pour contrôler cette hypothèse nous avons fait

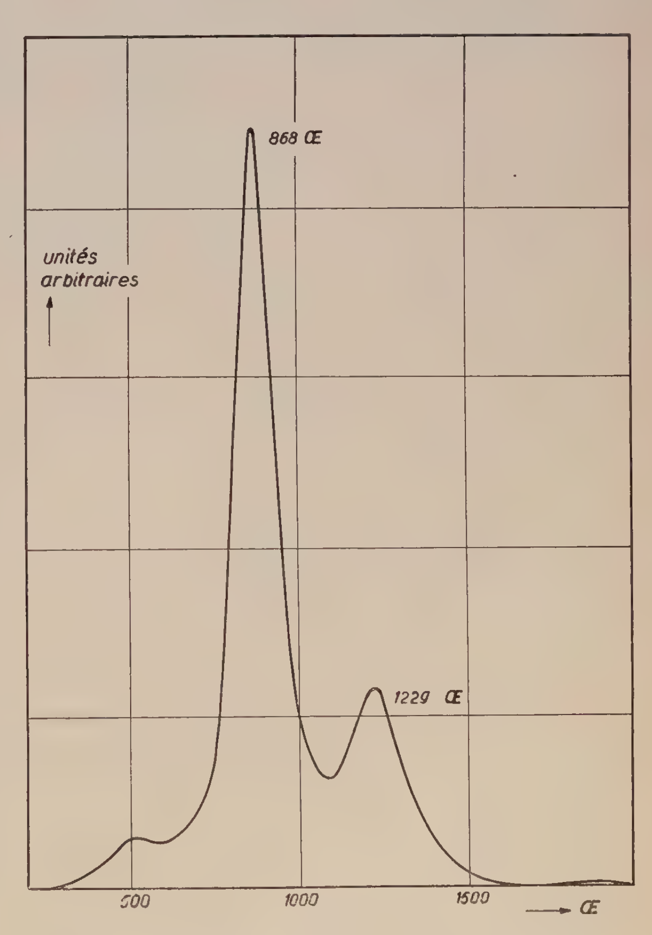


Fig. 3. — Raie de résonance après traitement de 7 h à une température de 370 °C.

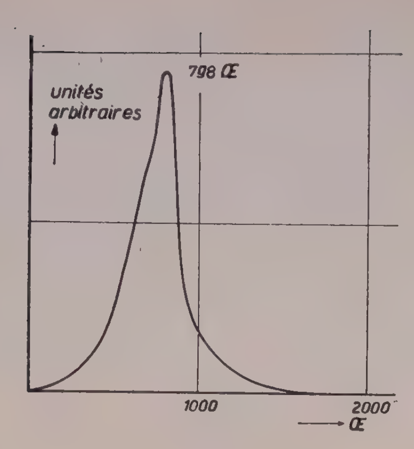


Fig. 4. — Raie de résonance après un deuxième traitement de 7 h à 500 °C.

quelques expériences sur le traitement à haute température. Après un traitement de 7 h à 370 °C, suivi d'un refroidissement très lent (fournace cooling) la raie de résonance devient celle de la figure 3. On remarque la diminution de la raie supplémentaire et le déplacement vers les champs plus petits. Après un deuxième traitement de 7 h à 500 °C avec le même procédé de refroidissement, la courbe a perdu son deuxième maximum (*fig.* 4).

A la fin de cet article nous tenons à remercier l'Union Minière du Haut-Katanga, ainsi que le Centre Interuniversitaire de Recherches Nucléaires pour leur aide financière au cours de ces recherches.

Manuscrit reçu le 14 octobre 1960.

RÉFÉRENCES

[1] Van Itterbeek (A.), Forrez (G.), Smits (J.) et Witters (J.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 81.
[2] Van Itterbeek (A.) et Dupré (A.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 133.
[3] Kittel (C.), *Phys. Rev.*, 1946, **70**, 281-290, *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 155-161.
[4] Kittel (C.), Introduction to Solid State Physics, Wiley New-York, 1956. Kittel (C.), *J. Physique Rad.* 1951, **12**, 291.
[5] Bozorth (R.), Ferromagnetism, Van Nostrand, London, 1951, 870.
[6] Griffiths (J.), *Physica*, 1951, **17**, 253.

SUR L'ÉNERGIE D'EXCITATION DU PREMIER NIVEAU 2+ DES NOYAUX PAIR-PAIR

Par C. YTHIER et R. VAN LIESHOUT,
Instituut voor Kernphysisch Onderzoek, Amsterdam.

Résumé. — La présence d'une structure fine dans la variation de l'énergie d'excitation du premier niveau 2+ des noyaux pair-pair en fonction du nombre de neutrons dans la région $90 < N < 116$, suggérée par Chupp e. a. [1], semble confirmée. Une structure analogue semble présente dans la région $30 < N < 46$.

Abstract. — The variation of the energy of the first excited state in even-even nuclei, as a function of the neutron number, shows a fine structure. The existence of this effect has already been reported by Chupp et al. for the region $96 < N < 126$ and it is confirmed by more recent data. An analogous effect seems to be present in the region $30 < N < 46$.

L'énergie d'excitation du premier niveau 2+ des noyaux pair-pair est connue dans un très grand nombre de cas avec une précision de quelques pour-cents. Dans la région où le nombre de neutrons présents dans les noyaux varie entre 90 et 116, c'est-à-dire dans la région de déformation permanente, cette précision est même beaucoup plus grande dans de nombreux cas, là où le rayonnement de désexcitation a été mesuré à l'aide d'un spectrographe à cristal courbé. Chupp e. a. [1] ont remarqué que la courbe représentant pour chaque élément la variation de $E(2+)_1$ en fonction de N, bien qu'ayant l'allure générale prédite par la théorie de Bohr et Mottelson [2], présente une structure fine : par exemple ^{180}Hf a presque la même énergie $E(2+)_1$ que ^{178}Hf, comme si le moment d'inertie du noyau ne diminuait pas lorsque N passe de 106 à 108 ; il semble d'autre part exister un minimum dans la variation de E aussi bien à $N = 98$ (^{164}Dy) qu'à $N = 104$ (^{174}Yb).

Afin de mettre mieux en relief les particularités que l'on pourrait qualifier de structure fine, il nous a paru intéressant d'examiner à nouveau, en tenant compte des données expérimentales obtenues depuis l'observation de Chupp e. a. [1], la variation de $E(2+)_1$ dans la région $90 < N < 116$. La figure 1 montre qu'en dépit de l'erreur probable assez importante de ces déterminations spectroscopiques récentes [3] il semble exister, à côté des discontinuités signalées plus haut, d'autres discontinuités encore : à $N = 108$ pour le tungstène, comme le montre la position inattendue de ^{180}W ; à $N = 98$ pour l'erbium, comme il résulte de la valeur trouvée récemment pour ^{164}Er et si l'identification de ^{170}Er est correcte [1]. L'anomalie du hafnium à $N = 106$ est soulignée par la position de ^{174}Hf le minimum dans les courbes du dysprosium et de l'ytterbium (si l'identification de ^{176}Yb est correcte [1]) est soulignée par la valeur trouvée pour ^{160}Dy et pour ^{168}Yb et ^{170}Yb.

Chupp e. a. [4] ont d'autre part appelé l'attention sur la linéarité remarquable de la variation de $E(2+)_1$ pour le tungstène entre $N = 108$ et $N = 112$. Comme le montre la figure 1, cette variation semble être également linéaire, dans un certain

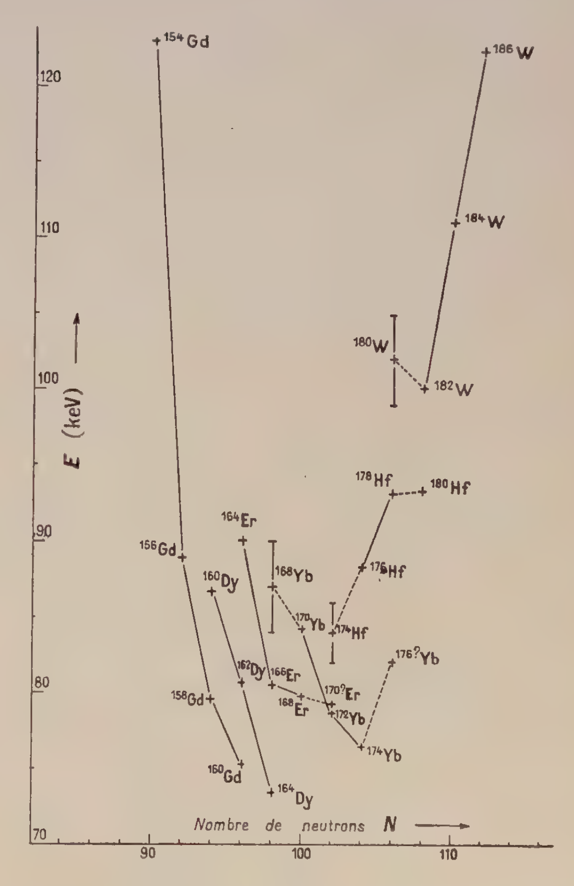


Fig. 1. — Variation de l'énergie d'excitation du premier niveau 2+ des noyaux pair-pair en fonction du nombre de neutrons entre $N = 90$ et $N = 116$. Les valeurs de l'énergie portées sur la figure sont prises dans les « Nuclear Data Sheets » (3). — *Erratum* : au centre et à droite de la figure, il faut un trait plein entre ^{178}Hf et ^{180}Hf.

TABLEAU I

EXAMEN DE LA LINÉARITÉ DE $E(2+)_1$ ENTRE CERTAINES VALEURS DE N POUR LES NOYAUX PAIR-PAIR DE LA RÉGION $90 < N < 116$

INTERVALLE CONSIDÉRÉ	ÉLÉMENT	ÉNERGIE E AUX BORNES DE L'INTERVALLE ET MOYENNE DE CES VALEURS (keV)			ÉNERGIE POUR LA VALEUR INTERMÉDIAIRE DE N E_2 (keV)	ÉCART ABSOLU (keV) $\Delta = E_2 - \bar{E}$	ÉCART RELATIF (%) Δ/E_2	ÉCART RELATIF DANS L'INTERVALLE LE PLUS PROCHE (%)
		E_1	E_3	$\bar{E} = \frac{E_1 + E_3}{2}$				
—	—	—	—	—	—	—	—	—
N = 86 à 90	Nd	457,5 ± 7,5	130,3 ± 1,5	293,7 ± 4,5	300 ± 3	+ 6,25 (± 7,5)	~ 2,1 %	
N = 94 à 98	Dy	86,70 (± 0,2)	73,39 ± 0,01	80,04 (± 0,11)	80,65 ± 0,02	+ 0,60 (± 0,13)	0,75 %	
N = 98 à 102	Er	80,57 ± 0,02	prob[t] 79,31 ± 0,02	79,94 ± 0,02	79,80 ± 0,02	— 0,14 (± 0,04)	0,17 %	N = 96 à 100 5,4 %
N = 100 à 104	Yb	84,26 ± 0,02	76,46 ± 0,01	80,36 ± 0,02	78,70 ± 0,01	— 1,66 (± 0,03)	2,1 %	N = 102 à 106 prob[t] 5,2 %
N = 104 à 108	Hf	88,35 ± 0,02	93,29 ± 0,02	90,82 ± 0,02	93,14 ± 0,02	+ 2,32 (± 0,04)	2,4 %	N = 102 à 106 prob[t] ~ 2,5 ‰
N = 108 à 112	W	100,07 ± 0,05	122,48 ± 0,08	$111{,}27_5 \pm 0{,}06_5$	111,13 ± 0,06	— 0,14 (± 0,12)	~ 0,14 %	

TABLEAU II

VÉRIFICATION DE LA LINÉARITÉ DE $E(2+)_1$ ENTRE CERTAINES VALEURS DE N POUR LES NOYAUX PAIR-PAIR DE LA RÉGION $28 < N < 50$

INTERVALLE CONSIDÉRÉ	ÉLÉMENT.	ÉNERGIE E AUX BORNES LE L'INTERVALLE ET MOYENNE DE CES VALEURS (keV)			ÉNERGIE POUR LA VALEUR INTERMÉDIAIRE DE N E_2 (keV)	ÉCART ABSOLU (keV) $\Delta = E_2 - \bar{E}$	ÉCART RELATIF (%) Δ/E_2
		E_1	E_3	$\bar{E} = \frac{E_1 + E_3}{2}$			
—	—	—	—	—	—	—	—
N = 30 à N = 34	Ni	1 452 ± 6	1 172 ± 4	1 312 ± 5	1 332,5 ± 0,3	+ 20 (± 6)	1,5 %
N = 34 à N = 38	Zn	991 ± 5	1 078 ± 5	1 034,5 ± 5	1 044 ± 10	+ 9,5 (± 15)	0,9 %
N = 38 à N = 42	Ge	1 042 ± 5	596,3 ± 1	819,2 ± 3	834,5 ± 1	+ 15,3 (± 4)	1,8 %
N = 42 à N = 46	Se	559,3 ± 0,1	654 ± 7	606,6 ± 4	615 ± 5	+ 8,4 (± 9)	1,3 %
N = 42 à N = 46	Kr	450 (± 20 ?)	776,9 ± 0,2	613,5 ± 10	620 ± 10	+ 6,5 (± 20)	1,0 %

intervalle, pour le dysprosium ($N = 94$ à 98), pour l'erbium ($N = 98$ à 102) si l'identification de ^{170}Er est correcte [1], pour l'ytterbium ($N = 100$ à 104) si l'identification de ^{176}Yb est correcte [1] (l'incertitude sur la valeur de l'énergie dans le cas de ^{168}Yb ne permet pas de dire si cette linéarité s'étend à $N = 98$), et probablement pour le hafnium ($N = 102$ à 106). Pour les éléments W, Hf, Yb et Er, cette linéarité est brusquement interrompue par les discontinuités relevées ci-dessus. Pour mieux mettre en évidence cette situation, il est commode de comparer, pour chaque élément, la moyenne des énergies trouvées pour ces valeurs de N, par exemple 108 et 112 (W), à l'énergie trouvée pour la valeur intermédiaire de N, ici $N = 110$. Le tableau I montre le résultat d'une telle comparaison.

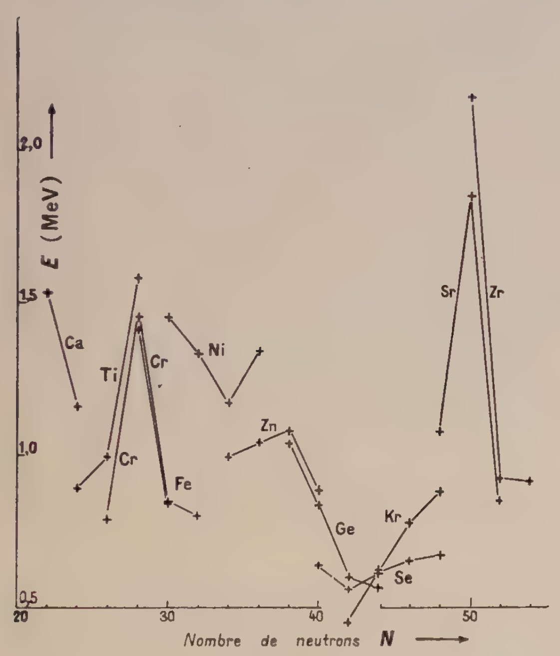


Fig. 2. — Variation de $E(2+)_1$ pour les noyaux pair-pair de la région $28 < N < 50$ (cf. légende fig. 1).

En dépit du caractère incomplet et, dans quelques cas, encore imprécis des données sur $E(2+)_1$ dans cette région, son examen semble indiquer que la variation de E n'a pas l'allure continue qu'on attendrait d'après la théorie de Bohr et Mottelson.

Afin de savoir si la présence d'une telle structure fine est caractéristique des noyaux à déformation permanente, l'analyse a été étendue aux autres domaines de N, à l'exception des noyaux légers, car on en connaît trop peu de même Z et de N différents, et des noyaux pour lesquels N correspond à la fermeture d'une couche de neutrons [5] ou aux limites de la région de déformation permanente [6]. (La variation en fonction de Z offre peu d'intérêt car on connaît trop peu de noyaux de même N et de Z différents. Une comparaison de la position des premiers et seconds niveaux 2 + est difficile en raison de la dégénérescence des seconds niveaux excités [6, 3].)

Dans la région $30 < N < 46$, la variation de $E(2+)_1$ pour un élément donné semble bien être linéaire entre certaines valeurs de N, comme le montre la figure 2. Le tableau II permet de vérifier cette linéarité : l'écart ne diffère de zéro de façon significative que dans deux des cas étudiés et, même dans ces deux cas, sa valeur relative est inférieure à 2 %. Pour tous les éléments examinés ici, la variation de E a même allure : l'intervalle où elle est linéaire est brusquement interrompu par une discontinuité très marquée lorsque N atteint la valeur 34 (Ni), 38 (Zn), 42 (Ge et Se) et 46 (Kr) ; entre deux valeurs consécutives de cette suite, la variation de E a le même sens pour tous les éléments ; ce sens diffère d'un intervalle au suivant.

La linéarité n'est pas rompue pour $N = 40$, nombre qui doit correspondre à la clôture d'une sous-couche de neutrons ; on observe seulement un relèvement d'ensemble de la courbe qui culmine à $N = 38$. Ce fait mérite d'être comparé aux observations de Way, Kundu, McGinnis et Van Lieshout [7], qui ont signalé l'importance du nombre $N = 38$ dans la classification des spins des états fondamentaux des noyaux. La position très élevée des noyaux de nickel dans la figure 2 est en relation avec la valeur de Z ($Z = 28$). On voit que l'augmentation de E par rapport aux éléments voisins, par exemple le chrome ($Z = 26$), est du même ordre que celui observé pour $N = 28$.

Dans la région $50 < N < 82$, l'influence de la fermeture d'une couche de neutrons à $N = 82$ est déjà ressentie pour $N = 72$; en outre, non seulement l'étain, mais aussi le cadmium et le tellure manifestent l'influence de la fermeture d'une couche de protons à $Z = 50$ [5] ; dans ces domaines l'énergie d'excitation $E(2+)_1$ est beaucoup plus élevée : aussi serait-il utile, pour y relever une éventuelle structure fine, de connaître la valeur de E avec une très haute précision.

La figure 3 montre que les seuls détails remarquables dans cette région sont d'une part une discontinuité marquée (à $N = 56$ pour $Z = 42$, à $N = 60$ pour $Z = 46$, à $N = 62$ pour $Z = 48$, à $N = 64$ pour $Z = 50$), d'autre part une variation remarquablement linéaire dans certains intervalles ($N = 60$ à 64 pour $Z = 46$, $N = 62$ à 66 pour $Z = 48$, $N = 68$ à 72 pour $Z = 50$).

On ne relève aucune ressemblance entre la variation de E dans cette région et celle observée dans la région $30 < N < 46$. Il n'en est pas de même si l'on examine la variation de B_2 au lieu de celle de E (B_2 est le paramètre de masse du mouvement de vibration). Cette variation a été examinée dans le cas du cadmium, de l'étain et du tellure par

Alkhazov e. a. [8] ; la figure 6 de cette référence suggère l'existence d'une structure fine analogue à celle signalée dans la région $30 < N < 46$.

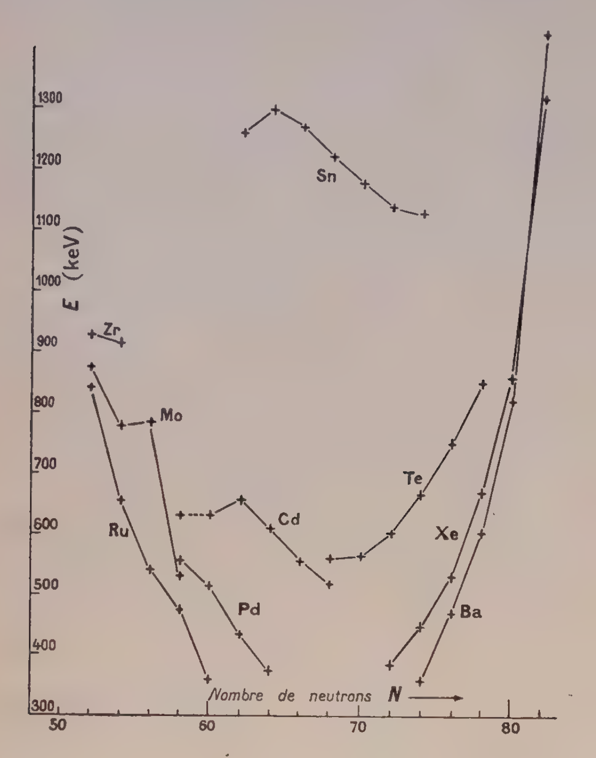


FIG. 3. — Variation de $E(2+)_1$ pour les noyaux pair-pair de la région $50 < N < 82$ (cf. légende fig. 1).

***

En conclusion, les observations faites par Chupp e. a. [1, 4] peuvent être étendues à quelques autres cas dans la région $90 < N < 116$. Il existe d'autre part une structure remarquable dans la région $30 < N < 46$. Enfin quelques particularités peuvent être signalées dans la région $50 < N < 82$.

S'il n'est pas possible à partir de ces observations d'élaborer une règle générale, le rôle joué par le nombre de neutrons N dans la variation de $E(2+)_1$ ressort néanmoins, par exemple dans la tendance manifestée par cette variation à être linéaire dans des intervalles dont la largeur est le plus souvent $\Delta N = 4$.

Il apparaît également que la structure fine revêt des aspects différents selon le domaine de N considéré.

Aucun de ces aspects ne paraît avoir été prévu par la théorie. Non seulement aucune théorie n'a conféré une importance particulière à des paires de paires de neutrons, mais encore on ne voit pas, par exemple, comment expliquer dans le modèle en couches l'apparition de discontinuités aussi bien à $N = 34$, 42 et 46 qu'à $N = 38$ pour les éléments Ni, Zn, Ge, Se et Kr. Si un maximum à $N = 64$ dans la variation de $E(2+)_1$ pour l'étain n'est pas surprenant, puisque l'importance de ce nombre a été signalée à propos d'une classification des spins des états fondamentaux des noyaux [7], on est étonné d'observer un maximum analogue pour le cadmium à $N = 62$. Enfin les particularités observées dans la région des noyaux à déformation permanente contraste avec la variation régulière que laisse prévoir le modèle de Bohr et Mottelson.

Le présent travail, exécuté dans le cadre du programme de la Fondation pour les recherches fondamentales sur la matière (F. O. M.), a bénéficié de l'aide de l'Organisation néerlandaise pour la recherche pure (Z. W. O.).

Manuscrit reçu le 28 septembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] CHUPP (E. L.), DU MOND (J. W. M.), GORDON (F. J.), JOPSON (R. C.) et MARK (H.), *Phys. Rev.*, 1958, **112**, 518.

[2] BOHR (A.) et MOTTELSON (B. R.), *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk*, 1953, **27**, n° 16 ; « Beta and Gamma Ray Spectroscopy » North-Holland Publ. Co, Amsterdam (1955), chap. 17.

[3] « Nuclear Data Sheets », National Academy of Sciences, National Research Council, Washington 25, D. C.

[4] CHUPP (E. L.), CLARK (A. F.), DU MOND (J. W. M.), GORDON (F. J.) et MARK (H.), *Phys. Rev.*, 1957, **107**, 745.

[5] SCHARFF-GOLDHABER (G.), *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 587. PREISWERK (P.) et STAEHELIN (P.), *Nuovo Cimento*, 1953, **10**, 1219.

[6] SCHARFF-GOLDHABER (G.) et WENESER (J.), *Phys Rev.*, 1955, **98**, 212.

[7] WAY (K.), KUNDU (D. N.), MCGINNIS (C. L.) et VAN LIESBOUT (R.), *Ann. Rev. Nucl. Sci.*, 1956, **6**, 129.

[8] ALKHAZOV (D. G.), ANDREEV (D. S.), EROKHINA (K. I.) et LEMBERG (I. KH.), *Soviet Physics*, J. E. T. P., 1958, **6**, (33), n° 6, 1036 ; cf. TEMMER (G. M.), HEYDENBURG (N. P.), *Phys. Rev.*, 1956, **104**, 967.

LA FUSION DES CORPUSCULES EN THÉORIE FONCTIONNELLE

Par JEAN-LOUIS DESTOUCHES,
Institut Henri-Poincaré, Paris.

Résumé. — Étude en théorie fonctionnelle relativiste de l'onde barycentrique d'une partie d'un système physique et des ondes relatives. Définition d'une partie « fondue » (une partie est fondue si les ondes relatives de ses corpuscules sont des constantes). Expression de l'équation d'évolution et des équations de condition pour l'onde u_P d'une partie fondue. Étude de cas particuliers : fusion de 2 et de 3 corpuscules, fusion de la totalité du système. Étude de deux fusions successives, équivalence à une seule fusion. Cas particulier de corpuscules de spin 3/2 ou 2 obtenus par fusion directe de 3 ou de 4 corpuscules de spin 1/2 ou par fusions successives. Étude de plusieurs fusions successives : plusieurs fusions équivalent à une seule fusion. Les phénomènes nucléaires avec apparition et disparition ou transformation de particules peuvent être décrits par des processus de fusion.

Abstract. — Barycentric wave for a part of a physical system and relative waves in relativistic functional theory. " Melted " part of a system : a part is melted if the relative waves are constant. Evolution-equation and condition-equations for the u_P wave of a melted part P. Particular cases : fusion of 2 and 3 particles, fusion of the whole system. Successive fusions, proof of equivalence with only one fusion ; particular cases : particle with spin 3/2 and particle with spin 2 obtained by direct fusion of 3 or 4 particles of spin 1/2 or by successive fusions. Several fusions are equivalent to only one fusion. Nuclear phenomena with creations and annihilations or change of particles can be described by fusion processes.

1. Introduction. — M. Louis de Broglie [1] en 1934 a introduit sous le nom de fusion un procédé formel permettant de former des corpuscules de spin arbitraire en mécanique ondulatoire usuelle en partant de corpuscules de spin 1/2 ; en particulier, il obtenait le photon par la fusion de deux corpuscules de spin 1/2. Mme F. Aeschlimann [2] dans un mémoire récent a montré qu'en théorie fonctionnelle, la fusion de deux corpuscules apparaissait comme un processus physique (et non plus seulement formel) correspondant à un état de mouvement du système dans lequel il y a évanescence du mouvement autour du barycentre. Nous nous proposons ici d'étendre ses résultats au cas d'un système de n corpuscules.

2. Équations fondamentales. — Nous admettrons que les N corpuscules d'un système S sont numérotables au point de vue de leur description théorique (voir [3]) et que chaque corpuscule C_j est représenté par une fonction u_j ayant des composantes $u_{j\alpha}$ en nombre fini. La fonction u_j obéit à une équation de la forme

$$\mathfrak{L}_j\, u_j = Q_j \qquad (j = 1, 2, \ldots, N) \tag{1}$$

où $\mathfrak{L}_j$ est un opérateur linéaire pour u_j dépendant des autres fonctions u_k du système et Q_j une expression analytique non linéaire en u_j dépendant aussi des autres fonctions u_k. L'opérateur $\mathfrak{L}_j$ est de la forme

$$\mathfrak{L}_j =_{\mathrm{d}} \mathfrak{H}_j + i\hbar \frac{\partial}{\partial t}$$

où $\mathfrak{H}_j$ est un opérateur linéaire ne contenant pas $\frac{\partial}{\partial t}$. En outre l'équation (1) est supposée satisfaire au principe de relativité restreinte (invariance de forme par rapport aux transformations de Lorentz); cette condition est en particulier vérifiée si l'opérateur $\mathfrak{H}_j$ est l'opérateur hamiltonien d'une équation de Dirac : u_j et Q_j sont alors deux spineurs.

La fonction u_j ayant des composantes $u_{j\alpha}$ nous poserons

$$\mathcal{N}_{j,\alpha} =_{\mathrm{d}} u_{j,\alpha}^{-1}\, Q_{j,\alpha}.$$

et les équations (1) si on explicite leurs composantes prennent alors la forme

$$i\hbar \frac{\partial u_{j\alpha}}{\partial t} = (\mathcal{N}_{j,\alpha} - \mathfrak{H}_j)\, u_{j,\alpha}. \tag{2}$$

3. Onde barycentrique. — Soit P_k une partie de n_k corpuscules d'un système S. Nous appellerons *onde barycentrique de la partie* P_k la fonction u_{P_k} définie par le produit des ondes de chaque corpuscule de la partie P_k, soit pour une composante k :

$$u_{P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}(\mathrm{P}, t) =_{\mathrm{d}} \prod_{j \in P_k} u_{j,\alpha_j}(\mathrm{P}, t). \tag{3}$$

où P, t désigne un point variable dans l'espace-temps.

Considérons p parties de S deux à deux disjointes, $P_1, \ldots, P_p$ et soit P la partie réunion de $P_1, \ldots P_p$, soit

$$P = \bigcup_{k=1}^{p} P_k$$

nous appellerons *onde barycentrique de la réunion des parties P_k* la fonction u_P définie par

$$u_{P\alpha_1\ldots\alpha_i,\beta_1\ldots\beta_k,\lambda_1\ldots\lambda_n} =_d \prod_{k=1}^{p} u_{P_k\beta_1\ldots\beta_k}. \quad (4)$$

En comparant les formules (3) et (4), on voit que

$$u_P = \prod_{k=1}^{p} \left(\prod_{j\in P_k} u_j \right) = \prod_{j\in P} u_j$$

et que u_P est ainsi l'onde barycentrique de la partie P, donc *l'onde barycentrique d'une réunion de parties disjointes est identique à l'onde barycentrique de tous les corpuscules appartenant à la réunion.* Ceci correspond à la propriété classique : le barycentre de barycentres partiels est identique au barycentre de tous les éléments.

De (3), en dérivant, nous avons

$$\frac{\partial u_{P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}}{\partial t} = u_{P_k,\alpha_1,\ldots\alpha_q} \sum_{j=1}^{n} u_{j,\alpha_j}^{-1} \frac{\partial u_{j,\alpha_j}}{\partial t}$$

d'où à partir de (2) l'équation de l'onde barycentrique de la partie P_k :

$$i\hbar \frac{\partial u_{P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}}{\partial t} = u_{P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} \sum_{j\in P_k} (\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - u_{j,\alpha_j}^{-1} \mathfrak{H}_j\, u_{j,\alpha_j}). \quad (5)$$

4. **Ondes relatives.** — Nous appellerons *onde relative d'un corpuscule C_j par rapport au barycentre* d'une partie P contenant C_j, la fonction $u_{r,j}$ définie par

$$u_{r,j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} =_d u_{j,\alpha_j} \cdot u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}^{-\frac{m_j}{M}} \quad (6)$$

où m_j est un coefficient positif constant laissé arbitraire pour le moment (sans liaison avec la masse au repos de C_j) et M la somme des coefficients m_j des corpuscules de la partie P :

$$M = \sum_{j\in P} m_j.$$

De là, on tire

$$u_{j,\alpha_j} = u_{r,j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} \cdot u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}^{\frac{m_j}{M}}. \quad (7)$$

L'équation (5) peut alors être transformée en utilisant la définition (6), c'est-à-dire en remplaçant les u_{j,α_j} par leur expression (7). Posons pour simplifier l'écriture :

$$\mathcal{H}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}^{(P)} =_d u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}^{-\frac{m_j}{M}} \mathfrak{H}_j \cdot u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}^{\frac{m_j}{M}} \quad (8)$$

et (5) prend la forme

$$i\hbar \frac{\partial u_{P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}}{\partial t} = u_{P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} \sum_{j\in P_k} (\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - u_{r,j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}^{-1} \cdot {}_{\mathrm{op}}\mathcal{H}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}^{(P_k)} \cdot u_{r,j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}). \quad (9)$$

En décrivant (6), on a

$$\frac{\partial u_{r,j,\alpha_1,\ldots,\alpha_k}}{\partial t} = u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_k}^{-\frac{m_j}{M}} \frac{\partial u_{j,\alpha_j}}{\partial t} - \frac{m_j}{M} u_{j,\alpha_j} \cdot u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_k}^{-\frac{m_j}{M}-1} \frac{\partial u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_k}}{\partial t}.$$

En tenant compte de (2) et (5), puis de (7), on obtient l'équation des ondes relatives pour la partie P_j :

$$i\hbar \frac{\partial u_{r,j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}}{\partial t} = (\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - {}_{\mathrm{op}}\mathcal{H}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}^{(P)})\, u_{r,j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} - \frac{m_j}{M} u_{r,j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} \sum_{i\in P_k} (\mathcal{N}_{i,\alpha_i} - u_{r,i,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}^{-1}\, {}_{\mathrm{op}}\mathcal{H}_{i,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}^{(P)}\, u_{r,i,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}). \quad (10)$$

(L'indice op placé à gauche de $\mathcal{H}$ signifie que l'opérateur $\mathfrak{H}$ contenu dans $\mathcal{H}$ opère sur tout ce qui est écrit à sa droite, donc ici opère sur $u_{r,i,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}$.)

En effectuant le produit des ondes u_{j,α_j} d'une partie P, en tenant compte de (7) et de la définition (3), on obtient la relation

$$\prod_{j\in P} u_{r,j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} = 1. \quad (11)$$

5. **Partie fondue.** — Nous appellerons *mouvement* d'un système S une solution $u_1, u_2, \ldots, u_N$ des équations (1) du système S.

Nous dirons qu'une partie P d'un système S est *semi-fondue* pendant un intervalle de temps (t_0, t_1) d'un observateur, si le mouvement du système est tel qu'introduisant l'onde barycentrique de la partie P et les ondes relatives pour les corpuscules C_j de cette partie P, ces ondes relatives $u_{r,j}$ se réduisent à des constantes dans cet intervalle de temps (c'est-à-dire que les $u_{r,j}$ sont des fonctions constantes du point variable P,t de l'espace-temps dans l'intervalle de temps (t_0, t_1) d'un observateur).

$$u_{r,j,\alpha_1,\ldots,\alpha_n} = C_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_n} \quad (j \in P\, ;\ t_0 < t < t_1). \quad (12)$$

La partie P sera dite *fondue* si les constantes $C_{j,\alpha_1\ldots\alpha_n}$ sont indépendantes des indices ou bien nulles, soit

$$C_{j,\alpha_1\ldots\alpha_n} = C_{j,\varkappa,\alpha_1\ldots\alpha_n}$$

où $\varkappa_{\alpha_1,\ldots\alpha_n}$ est un nombre égal à 0 ou à 1 selon les valeurs des indices $\alpha_1,\ldots\alpha_n$, et il existe au moins certaines valeurs $\varkappa_{\alpha_1,\ldots\alpha_n}$ égales à 1 (composantes $C_{j,\alpha,\ldots\alpha_n}$ non toutes nulles).

Selon les interactions, les perturbations subies, les conditions initiales fixées pour les équations (1) du système, la partie P peut être fondue pendant l'intervalle (t_0, t_1) et ne plus l'être à des époques antérieures ou postérieures à cet intervalle, ou bien continuer à rester fondue. Les circonstances du mouvement peuvent être extrêmement variées.

Lorsque la partie P est fondue, les équations (9) et (10) se simplifient car les $u_{r,j,\alpha_1,\ldots,\alpha_n}$ étant dans ce cas des constantes, elles commutent avec les opérateurs. Posons pour simplifier l'écriture :

$$S^{(P)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_q} =_{\mathrm{d}} \sum_{j\in P} \left({}^{F}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{H}^{(P)}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}\right) \qquad (13)$$

où l'indice F placé à gauche de $\mathcal{N}$ signifie que dans $\mathcal{N}$ on a utilisé la formule (7) et remplacé les $u_{r,i,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}$ par leurs valeurs constantes. Avec cette notation, on obtient à la place de (9) et (10) dans le cas de fusion de la partie P :

$$i\hbar \frac{\partial u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}}{\partial t} = u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} \cdot S^{(P)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_q} \qquad (14)$$

$${}^{F}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathfrak{H}^{(P)}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} - \frac{m_j}{M} S^{(P)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_q} = 0. \qquad (15)$$

l'équation (14) provient de (9) compte tenu de la fusion de la partie P, et constitue *l'équation d'évolution* de la partie fondue P. Chaque équation (10) pour la partie P se réduit à une équation (15) ; on obtient ainsi q *équations de condition* qui doivent être remplies à tout instant de l'intervalle (t_0, t_1) pendant lequel il y a fusion de la partie P constituée par q corpuscules. On remarquera que ces q équations sont liées par l'identité :

$$\sum_{j\in P} \left({}^{F}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{H}^{(P)}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}\right) - S^{(P)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_q} = 0 \qquad (16)$$

obtenue en ajoutant membre à membre les équations (15) et en tenant compte de la définition (13). Il n'y en a donc que $q - 1$ qui sont indépendantes. Pour les corpuscules du reste du système, c'est-à-dire ceux de la partie S — P, on conserve les équations (2) pour chaque corpuscule de cette partie, en tenant compte de (7) et (12) pour les fonctions u des corpuscules de la partie P qui y figurent. On voit que dans une partie fondue on ne peut pas distinguer des corpuscules la constituant. La partie se comporte comme un tout, en somme comme un corpuscule complexe. Pour qu'un système S admette une partie P fondue, il est nécessaire que l'équation (14) et les équations (15) soient compatibles (s'il y a q corpuscules dans la partie P). Si ces équations ne sont pas compatibles, c'est-à-dire si l'on ne peut pas avoir une solution non constante $u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}$ des équations (14) et (15), alors il est impossible que la partie P soit fondue.

6. Systèmes contenant des parties fondues. — Au lieu qu'il n'y ait qu'une partie P fondue, il peut y avoir dans le système S des parties disjointes $P_1, \ldots, P_n$ qui soient fondues pendant un intervalle (t_0, t_1) ; pour chaque partie fondue P_k, on écrit une équation (14) et autant d'équations (15) que la partie P_k contient de corpuscules ; pour les corpuscules n'appartenant pas à une partie fondue, c'est-à-dire les corpuscules de la partie $S - \bigcup_k P_k$, on conserve les équations (2). Si le système S contient N corpuscules, au lieu de N équations de la forme (2), lorsqu'il y a des parties disjointes fondues $P_1, \ldots, P_k$ comprenant respectivement $n_1, \ldots, n_k$ corpuscules, les $\sum_{i=1}^{k} n_i$ équations (2) des corpuscules appartenant à des parties fondues sont remplacées par les k équations (14) et les $\sum_{i=1}^{k} n_i$ équations (15) dont $\sum_{i=1}^{k} n_i - k$ sont indépendantes. Le système S se trouve alors régi par N équations indépendantes ; k équations (14), $\sum_{i=1}^{k} n_i - k$ équations (15) indépendantes, et $N - \sum_{i=1}^{k} n_i$ équations (2).

Lorsqu'on arrive aux extrémités de l'intervalle (t_0, t_1), ou bien les fusions demeurent, ou bien certaines fusions cessent d'avoir lieu. On remarquera qu'une fusion est un événement objectif (c'est-à-dire une propriété intrinsèque de la partie P) et invariant (c'est-à-dire indépendant du système de référence considéré).

7. Cas particuliers de fusion. — On remarquera aussi que les formules (14) et (15) sont valables quel que soit le nombre q de corpuscules constituant la partie fondue P. En particulier, pour $q = 1$, l'équation (14) se trouve identique à (2) tandis que (15) est identique à l'identité (16), compte tenu de la définition (13) : on a bien réduction à l'équation d'un seul corpuscule.

Pour $q = 2$, les deux expressions (15) donnent deux expressions opposées en accord avec (16) et (13). Les équations (14) et (15) s'explicitent alors en

$$i\hbar \frac{\partial u_{(2)\alpha\beta}}{\partial t} = u_{(2)\alpha\beta}\left({}^{F}\mathcal{N}_{1,\alpha} + {}^{F}\mathcal{N}_{2,\beta} - \mathcal{H}^{(2)}_{1,\alpha\beta} - \mathcal{H}^{(2)}_{2,\alpha\beta}\right) \qquad (14_2)$$

$$0 = m\left({}^{F}\mathcal{N}_{1,\alpha} - \mathcal{H}^{(2)}_{1,\alpha\beta}\right) - m_1\left({}^{F}\mathcal{N}_{2,\beta} - \mathcal{H}^{(2)}_{2,\alpha\beta}\right) \qquad (15_2)$$

Ces équations, à la notation près, sont identiques à celles données par Mme F. Aeschlimann [2], elles sont identiques aux équations d'un corpuscule de spin maximum 1 (spin 0 ou 1). Pour $q = 3$, les trois équations (15) sont liées par l'identité (16), deux sont indépendantes et on a comme équations de la partie fondue :

$$i\hbar \frac{\partial u_{(3)\alpha\beta\gamma}}{\partial t} = u_{(3)\alpha\beta\gamma}\, S^{(3)}_{\alpha\beta\gamma} \qquad (14_3)$$

$$0 = \mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{H}^{(3)}_{j,\alpha\beta\gamma} - \frac{m_j}{M_3} S^{(3)}_{\alpha\beta\gamma}, \quad (j = 1, 2, 3). \qquad (15_3)$$

Un autre cas particulier est celui où tous les N copuscules du système S sont fondus, dans ce cas, $P = S$, on a une seule équation d'évolution (14) pour le système S, et N équations de condition

liées par l'identité (16). Si ces équations sont compatibles, on a

$$i\hbar\frac{\partial u_{(N),\alpha_1,\ldots,\alpha_N}}{\partial t} = u_{(N),\alpha_1,\ldots,\alpha_N}\, S^{(N)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_N} \qquad (14_N)$$

$$0 = \mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{H}^{(N)}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_N} - \frac{m_j}{M_N} S^{(N)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_N}. \qquad (15_N)$$

8. **Fusions successives.** — Considérons un système S admettant des parties fondues deux à deux disjointes $P_1, P_2, \ldots, P_k, \ldots, P_p$ composées respectivement de $n_1, n_2, \ldots, n_k, \ldots, n_p$ corpuscules et supposons que ces parties viennent à se fondre en une partie P. Chaque partie P_k obéit à des équations (14) et (15). Si certaines de ces parties P_k étaient formées d'un seul corpuscule, alors l'équation (14) se réduirait à (2), et (15) serait une identité (car elle s'identifie alors à la définition (13)) ; les équations demeurent valables dans ce cas particulier. L'onde barycentrique $u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}$ de la partie P formée par la réunion de parties P_k est donnée par la formule (4). D'après la propriété de l'onde barycentrique énoncée au § 4, la fonction $u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}$ est le produit de toutes les fonctions u_{j,α_j} pour tous les corpuscules C_j appartenant à la réunion des parties P_k. En dérivant (4), et en tenant compte de (14), on obtient pour chaque partie P_k

$$i\hbar\frac{\partial u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}}{\partial t} = u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}\sum_{k=1}^{p} S^{(P_k)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_k}. \qquad (17)$$

Chaque partie P_k étant fondue, mais les diverses parties P_k n'étant pas en général fondues entre elles, on doit introduire des ondes relatives pour chaque partie fondue P_k, soit :

$$u_{r,P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} = u_{P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_k}\cdot u^{-M_k/M}_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}.$$

En dérivant par rapport au temps et en omettant les indices $\alpha_1, \ldots, \alpha_q$ qui figurent dans la composante considérée, on a

$$\frac{\partial u_{r,P_k}}{\partial t} = u_P^{-M_k/M}\frac{\partial u_{P_k}}{\partial t} - \frac{M_k}{M} u_{P_k}\cdot u_P^{-(M_k/M)-1}\cdot\frac{\partial u_P}{\partial t}.$$

En tenant compte de (14) pour la partie P_k et de (17), on obtient :

$$\frac{\partial u_{r,P_k}}{\partial t} = u_P^{-M_k/M}\cdot u_{P_k}\left(S^{(P_k)} - \frac{M_k}{M}\sum_{k=1}^{p} S^{(P_k)}\right). \qquad (18)$$

Si les parties P_k sont fondues entre elles pour former une partie fondue P, on doit, par définition de la fusion, poser que les ondes relatives u_{r,P_k} sont des constantes dont les composantes sont indépendantes des valeurs des indices, mais certaines peuvent être nulles, soit :

$$u_{r,P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} = C_k\cdot\varkappa_{k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}.$$

Dans ces conditions, les équations (17) et (18) deviennent :

$$i\hbar\frac{\partial u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}}{\partial t} = u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}\sum_{k=1}^{p} {}^{F}S^{(P_k)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_q} \qquad (19)$$

$$0 = {}^{F}S^{(P_k)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_q} - \frac{M_k}{M}\sum_{k=1}^{p} {}^{F}S^{(P_k)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_q}. \qquad (20)$$

A ces équations, il faut encore ajouter les équations de condition provenant de la première fusion :

$$0 = {}^{F}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{H}^{(P_k)}_j - \frac{m_j}{M_k} S^{(P_k)} \qquad (21)$$

et y effectuer la seconde fusion.

9. **Comparaison des équations d'évolution.** — Comparons l'équation d'évolution (19) avec celle que donnerait une fusion directe de tous les corpuscules de la partie P :

$$i\hbar\frac{\partial u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}}{\partial t} = u_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}\, S^{(P)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_q} \qquad (22)$$

$$0 = {}^{F_P}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{H}^{(P)}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q} - \frac{m_j}{M} S^{(P)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_q}. \qquad (23)$$

Selon la définition (8), on a après la première fusion et en introduisant l'onde barycentrique u_P :

$$\mathcal{H}^{(P_k)}_j = _d u^{-m_j/M_k}_{P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_k}\, \mathfrak{H}_j\, u^{m_j/M_k}_{P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_k}$$

$$= u^{-m_j/M_k}_{r,P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}\cdot u^{m_j/M_k\cdot M_k/M}_{P,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}\, \mathfrak{H}_j\, u^{m_j/M_k}_{r,P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}\, u_P^{m_j/M_k\cdot M_k/M}$$

d'où

$$\mathcal{H}^{(P_k)}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_k} = u^{-m_j/M_k}_{r,P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}\, {}_{op}\mathcal{H}^{(P)}_j\cdot u^{m_j/M_k}_{r,P_k,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}.$$

Si maintenant nous effectuons la seconde fusion, nous aurons des fonctions u_{r,P_k} qui seront devenues des constantes, d'où commutation et,

$$^{F}\mathcal{H}^{(P_k)}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_k} = \mathcal{H}^{(P)}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}. \qquad (24)$$

D'après la définition (13) pour la partie P_k et après la seconde fusion, nous aurons

$$^{F}S^{(P_k)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_q} = \sum_{j\in P_k}\left({}^{FF}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{H}^{(P)}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}\right) \qquad (25)$$

en désignant par n_k le nombre de corpuscules fondus en P_k. Soit $n = \Sigma_k n_k$ le nombre de corpuscules de la partie P, nous avons, d'après (13), en cas de fusion directe :

$$S^{(P)}_{\alpha_1,\ldots,\alpha_q} = \sum_{j\in P}\left({}^{F_P}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{H}^{(P)}_{j,\alpha_1,\ldots,\alpha_q}\right) \qquad (26)$$

mais ${}^{F_P}\mathcal{N}_{j,\alpha_j}$ s'obtient en remplaçant dans $\mathcal{N}_{j,\alpha_j}$ les arguments u_k pour $C_k \in P$ par $u_{r,k}\cdot u_P^{m_k/M}$ puis, lors de la fusion directe, en rendant constant le facteur $u_{r,k}$. Au contraire ${}^{F}\mathcal{N}_{j,\alpha_j}$ s'obtient en remplaçant les arguments u_k pour $C_k \in P_l$ par $u_{r_l,k}\cdot u_{P_l}^{m_k/M_l}$

puis lors de la première fusion, en rendant constant le facteur $u_{\mathrm{r}_l,k}$ et ${}^{\mathrm{F}}\mathcal{N}_{j,\alpha_j}$ s'obtient en remplaçant dans $\mathcal{N}_{j,\alpha_j}$ les arguments u_k par $u_{\mathrm{r},P_l} \cdot u_P^{M_l/M}$ puis, lors de la seconde fusion, en rendant constant le facteur u_{r,P_l}. Dans ces conditions, ${}^{\mathrm{F}P}\mathcal{N}_{j,\alpha_j}$ s'obtient en remplaçant dans $\mathcal{N}_{j,\alpha_j}$ les arguments u_k par $C_{\mathrm{r},k}\, u_P^{m_k/M}$ et ${}^{\mathrm{FF}}\mathcal{N}_{j,\alpha_j}$ s'obtient en remplaçant d'abord dans $\mathcal{N}_{j,\alpha_j}$ les arguments u_k par $C_{\mathrm{r}_l,k} \cdot u_{P_l}^{m_k/M_l}$ tout revient à remplacer les u_k par $C_{\mathrm{r}_l,k} \cdot u_{P_l}^{m_k/M_l}$ puis, comme u_{P_l} est remplacé par $C_{\mathrm{r},P_l} \cdot u_P^{M_l/M}$ tout revient à remplacer les u_k par $C_{\mathrm{r}_l,k} \cdot C_{\mathrm{r},P_l}^{m_k/M_l} \cdot u_P^{m_k/M}$. Mais on a

$$u_k = u_{\mathrm{r},k} \cdot u_P^{m_k/M} = u_{\mathrm{r}_l,k} \cdot \left(u_{\mathrm{r},P_l} \cdot u_P^{M_l/M}\right)^{m_k/M_l}$$

or cette relation subsiste même si les $u_{\mathrm{r},k}$ deviennent des constantes, par suite

$$C_{\mathrm{r},k} = C_{\mathrm{r}_l,k} \cdot C_{\mathrm{r},P}^{m_k/M_l}$$

par suite les arguments substitués aux u_k dans $\mathcal{N}_{j,\alpha j}$ pour obtenir ${}^{\mathrm{FF}}\mathcal{N}_{j,\alpha_j}$ et ${}^{\mathrm{F}P}\mathcal{N}_{j,\alpha_j}$ sont les mêmes, d'où la relation

$${}^{\mathrm{F}P}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} = {}^{\mathrm{FF}}\mathcal{N}_{j,\alpha_j}. \tag{27}$$

En comparant (25) et (26) compte tenu de cette relation (27), on voit que l'on a

$$\mathrm{S}^{(P)}_{\alpha_1,\dots,\alpha_q} = \sum_{k=1}^{p} {}^{\mathrm{F}}\mathrm{S}^{(P_k)}_{\alpha_1,\dots,\alpha_q}. \tag{28}$$

Cette relation nous montre que les équations (19) et (22) sont identiques, d'où :

Théorème. — *L'équation d'évolution pour une partie fondue $P = \bigcup P_k$ est la même que l'on fasse directement la fusion de tous les corpuscules de la partie P ou que l'on effectue d'abord la fusion des corpuscules des parties $P_1, P_2, \dots, P_p$ puis la fusion des parties $P_1, P_2, \dots, P_p$.*

10. Comparaison des équations de condition. — Les équations de condition (20) compte tenu de (28) s'expriment par

$$0 = {}^{\mathrm{F}}\mathrm{S}^{(P_k)}_{\alpha_1,\dots,\alpha_q} - \frac{M_k}{M}\, \mathrm{S}^{(\mathrm{P})}_{\dots,\alpha_q}. \tag{29}$$

Les équations de condition (21) pour la première fusion se transforment après la seconde fusion, d'après (24), en

$$0 = {}^{\mathrm{FF}}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{K}_j^{(P)} - \frac{m_j}{M_k}\, {}^{\mathrm{F}}\mathrm{S}^{(P_k)}. \tag{30}$$

Après les deux fusions successives, les équations de condition sont (29) et (30). Au contraire, dans la fusion directe, les équations de condition ont la forme (23).

Remplaçons dans (30) la quantité ${}^{\mathrm{F}}\mathrm{S}^{(P_k)}$ par son expression tirée de (29), nous obtenons

$$0 = {}^{\mathrm{FF}}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{K}_j^{(P)} - \frac{m_j}{M}\, \mathrm{S}^{(\mathrm{P})}_{\alpha_1,\dots\alpha_q} \tag{31}$$

ces équations sont identiques aux équations (23) par suite de la relation (27). Donc *les équations de condition* (20) *et* (30) *provenant des fusions successives entraînent les équations de condition de la fusion directe* (23).

Ajoutons membre à membre les équations (23) ou (31) pour $j \in P_k$, on obtient

$$0 = \sum_{j \in P_k} \left({}^{\mathrm{FF}}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{K}^{(P)}_{j,\alpha_1,\dots,\alpha_q}\right) - \frac{M_k}{M}\, \mathrm{S}^{(P)}_{\alpha_1,\dots,\alpha_q} \tag{32}$$

or la sommation, d'après (13), n'est autre que ${}^{\mathrm{F}}\mathrm{S}^{(P_k)}$, d'où les équations (20). Remplaçons alors dans (31) la quantité $\mathrm{S}^{(P)}$ par son expression tirée de (20)/(32), soit :

$$\mathrm{S}^{(P)} = \frac{M}{M_k}\, {}^{\mathrm{F}}\mathrm{S}^{(P_k)}$$

nous obtenons les équations (30). Donc *les équations de condition* (23) *provenant de la fusion directe entraînent les équations* (20) *et* (30) *provenant de fusions successives.*

Comme ceci a lieu aussi pour l'équation d'évolution, on arrive à ce théorème :

Théorème. — *Que l'on effectue la fusion des corpuscules de parties disjointes $P_1, P_2, \dots, P_p$ d'un système* S *puis la fusion de ces parties entre elles* $\left(P = \bigcup_{k=1}^{p} P_k\right)$ *ou que l'on effectue directement la fusion de tous les corpuscules de la partie P, on est conduit dans les deux cas aux mêmes équations d'évolution et de condition.*

11. Cas de corpuscules de spins 3/2 et 2. — Comme exemple d'application du théorème précédent, considérons une partie P (d'un système S) constituée par la fusion de trois corpuscules de spin 1/2. Si nous effectuons la fusion directe, nous obtenons comme équation de la partie fondue P une équation d'évolution (22_3), et trois équations de condition (23_3) dont deux sont indépendantes, soit en tout trois équations indépendantes (22_3) et deux équations (23_3).

$$i\hbar \frac{\partial u_{(3)\alpha\beta\gamma}}{\partial t} = u_{(3)\alpha\beta\gamma}\, \mathrm{S}^{(3)}_{\alpha\beta\gamma} \tag{22_3}$$

$$0 = {}^{\mathrm{F}_3}\mathcal{N}_{j,\alpha_j} - \mathcal{K}^{(3)}_{j,\alpha\beta\gamma} - \frac{m_j}{M}\, \mathrm{S}^{(3)}_{\alpha\beta\gamma} \tag{23_3}$$

où

$$\alpha_1 = \alpha, \quad \alpha_2 = \beta, \quad \alpha_3 = \gamma, \qquad j = 1, 2, 3.$$

Si les opérateurs $\mathfrak{H}_j$ sont ceux de corpuscules de spin 1/2 (opérateurs $\mathfrak{H}_j$ issus d'équations de Dirac),

la partie P notée (3) se comporte alors comme un corpuscule de spin maximum 3/2 (états de spin 3/2 et 1/2).

Mais au lieu d'effectuer la fusion directe, on pourrait d'abord effectuer la fusion d'une partie P_1 constituée de deux corpuscules de spin 1/2 qui se comporte comme un corpuscule de spin maximum 1 (états de spin 0 et 1), d'où comme équations après la première fusion

$$i\hbar \frac{\partial u_{P1,\alpha\beta}}{\partial t} = u_{P1,\alpha\beta}\, \mathcal{S}^{(2)}_{\alpha\beta}\ ; \quad i\hbar \frac{\partial u_{\gamma}}{\partial t} = u_{\gamma}\, \mathcal{S}^{(1)}_{\gamma} \qquad (22_2)$$

$$0 = {}^{\mathrm{F}_2}\mathcal{N}_{1,\alpha} - \mathcal{K}^{(2)}_{1,\alpha\beta} - \frac{m_1}{m_1 + m_2}\, \mathcal{S}^{(2)}_{\alpha\beta} \qquad (23_2)$$

puis on effectue ensuite la fusion de la partie P_1 notée (2) avec une partie P_2 notée (1) constituée d'un seul corpuscule de spin 1/2 ; d'après le théorème précédent, on obtient ainsi le même résultat, partie P fondue, que dans le cas de fusion directe. Dans ce cas, comme équation de la partie P, on a l'équation d'évolution (19_3) et deux équations de condition (20_3) et (29_3) identiques l'une à l'autre et qui prennent la forme (29_2) et deux équations de condition (30) identiques l'une à l'autre résultant de (23_2) de la première fusion :

$$\frac{i\hbar\, \partial u_{(3),\alpha\beta\gamma}}{\partial t} = u_{(3),\alpha\beta\gamma}({}^{\mathrm{F}}\mathcal{S}^{(2)}_{\alpha\beta\gamma} + {}^{\mathrm{F}}\mathcal{S}^{(1)}_{\alpha\beta\gamma}) \qquad (19_3)$$

$$0 = m_3\, {}^{\mathrm{F}}\mathcal{S}^{(2)}_{\alpha\beta\gamma} - (m_1 + m_2)\, {}^{\mathrm{F}}\mathcal{S}^{(1)}_{\alpha\beta\gamma} \qquad (29_2)$$

$$0 = {}^{\mathrm{F}_2\mathrm{F}_3}\mathcal{N}_{1,\alpha} - {}^{\mathrm{F}_3}\mathcal{K}^{(2)}_{1,\alpha\beta\gamma} - \frac{m_1}{m_1 + m_2}\, {}^{\mathrm{F}_3}\mathcal{S}^{(2)}_{\alpha\beta\gamma}. \qquad (30_2)$$

On a donc trois équations indépendantes, une d'évolution (19_3) et deux de condition (29_2) et (30_2) qui sont équivalentes à celles de la fusion directe d'après le théorème précédent, ou encore d'après les formules (24) et (28) qui se réduisent ici à :

$${}^{\mathrm{F}_3}\mathcal{K}^{(2)}_{j,\alpha\beta\gamma} = \mathcal{K}^{(3)}_{j,\alpha\beta\gamma}\ ; \qquad \mathcal{S}^{(3)}_{\alpha\beta\gamma} = {}^{\mathrm{F}_3}\mathcal{S}^{(2)}_{\alpha\beta\gamma} + {}^{\mathrm{F}_3}\mathcal{S}^{(1)}_{\alpha\beta\gamma}.$$

Dans (30_2) remplaçons $\mathcal{S}^{(2)}$ par

$$\frac{m_1 + m_2}{M}\, \mathcal{S}^{(2)} + \frac{m_3}{M}\, \mathcal{S}^{(2)}$$

et remplaçons le second terme par son expression en $\mathcal{S}^{(1)}$ tirée de (29_2), introduisons $\mathcal{S}^{(3)}$ par (28_3), d'où (23_3) pour $j = 1$. Pour $j = 2$, on aurait une équation non indépendante de la précédente et issue de (30_2). Dans (29_2) ajoutons et soustrayons $\frac{m_3}{M}\, {}^{\mathrm{F}}\mathcal{S}^{(1)}$ remplaçons $\mathcal{S}^{(1)}$ par sa définition et introduisons $\mathcal{S}^{(3)}$ par (28_3), on obtient (23_3) pour $j = 3$. D'où les équations (23_3) à partir de (29_2) et (30_2). Inversement ajoutons (23_3) membre à membre pour $j = 1$ et $j = 2$, on obtient (29_2) compte tenu de la définition des $\mathcal{S}$. Remplaçons $\mathcal{S}^{(3)}$ par son expression tirée de cette équation et portons dans (23_3) pour $j = 1$, on en tire (30_2). Les deux systèmes d'équations de conditions sont bien équivalents.

Donc *il n'y a qu'une seule façon d'obtenir un corpuscule fondu de spin maximum* 3/2. Si C_1, C_2, C_3 désignent les trois corpuscules constituant la partie P à fusionner, et si l'indice F marque la fusion, d'après le théorème précédent il y a quatre manières équivalentes d'obtenir la partie P fondue :

$$\mathrm{F}(C_1, C_2, C_3) = \mathrm{F}(\mathrm{F}(C_1, C_2), C_3) = \mathrm{F}(\mathrm{F}(C_2, C_3), C_1) = \mathrm{F}(\mathrm{F}(C_3, C_1), C_2)$$

De même une partie fondue formée de 4 corpuscules et constituant un corpuscule de spin maximum 2 (en particulier un graviton) peut être formée par fusions successives ou par fusion directe, on obtient toujours le même résultat, soit :

$$\mathrm{F}(C_1, C_2, C_3, C_4) = \mathrm{F}(\mathrm{F}(C_1, C_2), \mathrm{F}(C_3, C_4)) = \mathrm{F}(\mathrm{F}(C_1, C_2, C_3), C_4) = \mathrm{F}(\mathrm{F}(\mathrm{F}(C_1, C_2), C_3), C_4)$$

ainsi que les cas obtenus par permutation circulaire des indices. Le dernier cas ne résulte pas directement du théorème précédent puisqu'il y a trois fusions successives, mais d'après ce théorème on a

$$\mathrm{F}(C_1, C_2, C_3) = \mathrm{F}(\mathrm{F}(C_1, C_2), C_3)$$

donc on peut effectuer en deux étapes la fusion des trois corpuscules, puis encore une fusion $\mathrm{F}(\mathrm{F}(C_1, C_2, C_3), C_4)$, donc on obtient encore le même résultat après trois fusions. Les quatre cas précédents correspondent aux quatre décompositions de 4 par l'addition :

$$4 = 1 + 1 + 1 + 1 = 2 + 2 = 3 + 1 = 2 + 1 + 1.$$

12. **Cas de plusieurs fusions successives.** — Supposons que l'on effectue plusieurs fusions successives de corpuscules et de parties d'un système S. Soit $\mathrm{F}_{é,1}$ une première fusion de corpuscules en des parties $P_1, \ldots, P_k, \ldots, P_p$; soit F_2 une seconde fusion sur les parties $P_1, \ldots, P_k, \ldots, P_p$ en des parties $P'_1, \ldots, P'_j, \ldots, P'_n$; d'après le théorème précédent appliqué à chaque partie P'_j, on a, en désignant par & la conjonction de fusions successives dans l'ordre de gauche à droite, et l'indice é marquant que l'on fusionne des corpuscules non fondus (ou corpuscules élémentaires) :

$$\mathrm{F}_{é,1}\ \&\ \mathrm{F}_2 = \mathrm{F}_{é,2}. \qquad (33)$$

On a également d'après le même théorème :

$$\mathrm{F}_{é,2}\ \&\ \mathrm{F}_3 = \mathrm{F}_{é,3} \qquad (33'_2)$$

il en résulte que l'on a

$$(\mathrm{F}_{é,1}\ \&\ \mathrm{F}_2)\ \&\ \mathrm{F}_3 = \mathrm{F}_{é,3} \qquad (33_3)$$

c'est-à-dire qu'une première fusion $\mathrm{F}_{é,1}$ suivie d'une fusion F_2 puis d'une fusion F_3 des parties $P'_1, \ldots, P'_j, \ldots, P'_n$ en $P''_1, \ldots, P''_i, \ldots, P''_m$ est identique à la fusion directe des corpuscules en les parties $P''_1, \ldots, P''_i, \ldots, P''_m$. Plus généralement, en omet-

tant d'écrire les parenthèses indiquant les fusions déjà effectuées on a :

$$F_{é,1} \ \& \ F_2 \ \& \ \ldots \ \& \ F_k = F_{é,k} \qquad (33_k)$$

en effet, supposons que la formule soit valable pour $k - 1$, soit (33_{k-1}), d'après le théorème précédent, on aura

$$F_{é,k-1} \ \& \ F_k = F_{é,k} \qquad (33''_2)$$

en remplaçant $F_{é,k-1}$ par son expression tirée de (33_{k-1}), on obtient (33_k) ; on a donc

$$\vdash (33_2) \quad \text{et} \quad \vdash (33_{k-1}) \ \& \ (33'_2) \rightarrow (33_k).$$

Comme on a établi (33_2) et par suite (33_3), la formule (33_k) est valable pour $k = 2$ et $k = 3$. En vertu du principe d'induction complète, la formule est établie pour toute valeur de k, soit :

$$\vdash \forall k . (33_k).$$

d'où ce théorème :

Théorème. — *Que l'on effectue successivement les fusions* $F_{é,1}$ *de corpuscules en des parties* $P_1, \ldots, P_p$, *puis* F_2 *des parties* $P_1, \ldots P_n$ *en parties* $P'_1, \ldots, P'_n$, *puis* F_3 *des parties* $P'_1, \ldots, P'_n$ en $P''_1, \ldots, P''_m$, *etc..., enfin une fusion* F_k *des parties* $P_1^{(k-1)}, \ldots, P_l^{(k-1)}$ *en des parties* $P_1^{(k)}, \ldots, P_j^{(k)}$ *le résultat est le même que si l'on avait effectué directement la fusion* $F_{é,k}$ *des corpuscules en les parties* $P_1^{(k)}, \ldots, P_j^{(k)}$ *(chaque partie étant contenue dans une partie* $P_l^{(j+1)}$ *et cela pour tout* j *entre* 0 *et* $k - 1$ *et tout* m*), les équations d'évolution des parties* $P_1^{(k)}, \ldots, P_j^{(k)}$ *et les équations de condition sont les mêmes dans les deux cas.*

En résumé, *plusieurs fusions successives équivalent à une seule fusion.*

Revenons aux relations (33_2) et (33_3) ; supposons que l'on effectue d'abord la fusion $F_{é,1}$ des corpuscules en les parties $P_1, \ldots, P_k, \ldots, P_p$ puis une fusion $F_{2,3}$ des parties $P_1, \ldots, P_k, \ldots, P_p$ directement en les parties $P''_1, \ldots, P''_i, \ldots, P''_m$. On aura d'après (33_2)

$$F_{é,1} \ \& \ F_{2,3} = F_{é,3} \qquad (33''_2)$$

mais d'après $(33'_2)$ et (33_3), on aura

$$(F_{é,1} \ \& \ F_2) \ \& \ F_3 = F_{é,1} \ \& \ F_{2,3} = F_{é,3} \qquad (34)$$

$F_{é,1}$ est la première fusion à effectuer ; ensuite on peut donc d'une manière équivalente, effectuer successivement F_2 et F_3 ou bien une seule fusion $F_{2,3}$. On peut alors poser par définition

$$F_2 \ \& \ F_3 =_d F_{2,3}$$

car F_3 n'a pas de sens si elle n'est pas précédée de $F_{é,1}$ et F_2, de même $F_{2,3}$ n'a pas de sens si elle n'est pas précédée de $F_{é,1}$, mais on peut donner un sens à $F_2 \ \& \ F_3$ par la définition précédente ; avec cette notation (34) devient

$$(F_{é,1} \ \& \ F_2) \ \& \ F_3 = F_{é,1} \ \& \ (F_2 \ \& \ F_3) \qquad (35)$$

ce qui établit une *relation d'associativité entre plusieurs fusions successives.* On peut vérifier directement cette propriété en écrivant les équations des parties fondues.

Plus généralement, soit une suite $F_{é,1}, F_2, \ldots, F_i, \ldots, F_k, \ldots, F_n$ de fusions successives et désignons par $F_{i,k}$ la fusion faisant passer directement de F_{i-1} à F_k. Montrons que l'on a :

$$F_{é,1} \ \& \ F_2 \ \& \ \ldots \ \& \ F_{i-1} \ \& \ \ldots \ \& \ F_k \ \& \ F_{k+1} \ \& \ \ldots \ \& \ F_n$$
$$= F_{é,1} \ \& \ F_2 \ \& \ \ldots \ \& \ F_{i-1} \ \& \ F_{ij,} \ \& \ F_{j,k} \ \& \ \ldots \ \& \ F_{l,n}. \qquad (36)$$

D'abord

$$F_{é,1} \ \& \ F_2 \ \& \ \ldots \ \& \ F_{i-1} = F_{é,i-1}$$

et les dernières fusions étant les mêmes, il faut établir que

$$F_{é,i-1} \ \& \ F_i \ \& \ \ldots \ \& \ F_k = F_{é,i-1} \ \& \ F_{i,k}. \qquad (37)$$

Tout d'abord, d'après (35), on a

$$(F_{é,i-1} \ \& \ F_i) \ \& \ F_{i+1} = F_{é,i-1} \ \& \ (F_i \ \& \ F_{i+1}) \qquad (38)$$

et on peut définir $F_{i,i+1}$ par la parenthèse du second membre, soit

$$F_{i,i+1} = F_i \ \& \ F_{i+1}. \qquad (39)$$

Supposons que l'on ait établi

$$F_{e,i-1} \ \& \ F_i \ \& \ \ldots \ \& \ F_{j-1} = F_{é,i-1} \ \& \ F_{i,j-1}$$
$$F_{i,j} = F_{i,j-1} \ \& \ F_j$$

alors on aura d'après (35)

$$(F_{é,i-1} \ \& \ F_{i,j-1}) \ \& \ F_j = F_{é,i-1} \ \& \ (F_{i,j-1} \ \& \ F_j)$$

et on peut poser

$$F_{i,j} = F_{i,j-1} \ \& \ F_j$$

donc si la formule est valable pour $j - 1$, elle est encore valable pour j, mais la formule est valable pour $j = i + 1$ d'après (38) et (39), donc par récurrence elle sera valable pour $j = i + 2$, puis pour $j = i + 3$, etc... jusqu'à $j = k$, donc valable pour k arbitraire $(k > i)$, ce qui établit donc la formule (37).

On peut remplacer dans (37) $F_{é,i-1}$ par la suite $F_{é,1}, \ \& \ F_2 \ \& \ \ldots \ \& \ F_{i-1}$ de fusions qui lui est équivalente, ce qui établit

$$F_{é,1} \ \& \ F_2 \ \& \ F_{i-1} \ \& \ F_i \ \& \ \ldots \ \& \ F_k$$
$$= F_{é,1} \ \& \ F_2 \ \& \ \ldots \ \& \ F_{i-1} \ \& \ F_{i,k} \qquad (40)$$

de plus on peut faire suivre la fusion F_k ou la fusion $F_{i,k}$ (qui a abouti au même résultat) par la même suite de fusions $F_{k+1}, F_{k+2}, \ldots, F_n$, ce qui à partir de l'égalité (40) donne la formule générale (36), d'où ce théorème :

Théorème. — *Si on effectue plusieurs fusions successives* $F_1, \ldots, F_k, \ldots, F_n$, *on peut remplacer des fusions consécutives* $F_i, F_{i+1}, \ldots, F_j, \ldots, F_k$ *par une seule fusion* $F_{i,k}$.

13. **Conclusion.** — Nous arrivons donc à ces résultats :

1° Un système physique S peut avoir des parties fondues pendant un intervalle de temps (t_0, t_1). Une partie P peut ne pas être fondue avant t_0 ou après t_1.

2° La fusion est un processus physique réel (et non un procédé formel purement mathématique).

3° Les équations d'une partie fondue sont obtenues déductivement d'une façon parfaitement cohérente en respectant les exigences physiques.

4° Si on effectue plusieurs fusions successives, on peut remplacer des fusions consécutives par une seule fusion qui est équivalente à ces fusions consécutives.

5° Si P est une partie fondue, elle est objectivement fixée par les corpuscules qui la composent, quelle que soit la façon dont on l'a obtenue par des fusions successives.

Les phénomènes nucléaires dans lesquels des particules de divers types apparaissent ou disparaissent, ou sont transformées en d'autres particules, peuvent être décrites par de tels processus de fusion. Ainsi, en théorie fonctionnelle, ces phénomènes sont décrits d'une manière différente de celle de la théorie quantique des champs usuelle et cette nouvelle manière est probablement beaucoup plus directement physique.

Manuscrit reçu le 30 mai 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Broglie (L. de), Une nouvelle conception de la lumière (Act. Sc. et Ind., Herman, Paris, 1934), voir aussi : Une nouvelle théorie de la lumière, 2 vol., (Hermann, Paris, 1940). Théorie générale des particules à spin (Gauthier-Villars), Paris, 1re éd. ,1943, 2e éd., 1954.

[2] Aeschlimann (F.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 859.

[3] Destouches (J. L.) et Aeschlimann (F.), Les systèmes de corpuscules en théorie fonctionnelle (Hermann, Paris, 1959).

[4] Pour ce sens du terme « fondu », voir Destouches (J. L.), *J. Physique Rad.*, 1936, **7**, 305, 354, 427.

SUR L'INTERPRÉTATION DE LA MÉCANIQUE QUANTIQUE. III. FORMALISME MATHÉMATIQUE.

par A. B. DATZEFF,
Chaire de Physique Théorique à l'Université de Sofia, Bulgarie.

Résumé. — En généralisant les idées développées dans les publications [1], [2], on est arrivé ici au formalisme mathématique de la mécanique quantique non relativiste. On a montré que les relations d'incertitude, ainsi que les expériences mentales qui sont liées à leur interprétation, ont toujours un sens statistique et que l'on ne peut pas en tirer de conséquences sur la conduite d'un corpuscule unique.

Abstract. — As a summary of the ideas developed in the previous works [1], [2], the author has received in this work the mathematical formalism of the prerelativistic quantum mechanics. It is shown that the relations of uncertainty as well as the attempts for their interpretation hav always a statistical sense and from them one cannot draw a conclusion for the behaviour of a separate particle.

Dans le travail [1] nous avons montré qu'en faisant une certaine hypothèse physique sur la structure du champ auquel nous avons attribué un support matériel (subvac), on est arrivé à une image qualitative du mouvement d'un microcorpuscule μ (électron ou autre). Dans le travail [2] nous avons montré que la description probabiliste du mouvement de μ à l'aide d'une fonction $w(x, y, z, t) \geqslant 0$ (densité de probabilité) se ramène à l'étude d'une fonction $f(x, y, z, t)$, pour laquelle on a $|f|^2 = w$. On a trouvé pour f une équation de probabilité [2, (60)], identique à l'équation de Schrödinger. Dans le présent travail nous montrerons qu'en élargissant dans le même esprit l'hypothèse physique émise, on peut arriver au formalisme mathématique général de la mécanique quantique non relativiste. Nous donnerons aussi ici un aperçu général des résultats trouvés en les comparant à ceux connus de l'interprétation orthodoxe de la mécanique quantique et en étudiant aussi la question de la relation entre l'observation et la réalité dans le microcosmos.

A. **Formalisme mathématique général.** — D'après l'hypothèse émise [1], le champ de potentiel $U(x, y, z)$, se composant des corpuscules AS, peut se décomposer en formations $\Phi_k(k = 1, 2, ...)$. A cause des fluctuations des corpuscules AS et des formations Φ_k, un microcorpuscule μ aura un mouvement compliqué non classique. En cas de mouvement lié, le corpuscule μ passe par des états stationnaires A_k, à chacun desquels correspond une densité de probabilité $w_k(x, y, z)$ de fonction f_k correspondante et une valeur moyenne déterminée E_k de l'énergie. Ces valeurs quantifiées de l'énergie et les fonctions f_k peuvent être considérées comme valeurs propres et fonctions propres de l'équation de probabilité [2 (57)] (identique à l'équation d'amplitude de Schrödinger). D'après la théorie générale des équations différentielles elle peut être écrite sous la forme opératoire suivante :

$$\mathbf{H}\psi = E\psi \tag{1}$$

où $\mathbf{H}$ est l'opérateur linéaire suivant :

$$\mathbf{H} = -\frac{\hbar^2}{2m}\Delta + U(x, y, z) \tag{2}$$

et où E est un paramètre.

Mais le mouvement classique d'un corpuscule μ possède une suite de caractéristiques mécaniques : position $\boldsymbol{r}$, vitesse $\boldsymbol{v}$, impulsion $\boldsymbol{p}$, énergie cinétique T, moment cinétique $\boldsymbol{K}$ etc. (En tenant compte de l'importance connue en mécanique classique des variables canoniques menant aux équations de mouvement de forme symétrique, nous nous en servirons ici). En considérant le mouvement quantique du corpuscule μ lié à l'image physique donnée, on doit admettre que les caractéristiques mécaniques de μ possèdent aussi des variations chaotiques dans le temps, quoiqu'elles aient à chaque instant des valeurs bien déterminées. (Ainsi varient par exemple la position $\boldsymbol{r}$ et l'énergie E de μ, où la valeur probable de la position de μ et les valeurs fixes moyennes de E sont liées à la solution de l'équation (1). Indiquons par B une quelconque de ces caractéristiques mécaniques. Nous admettrons que la distribution des valeurs de B suit aussi des lois statistiques et que dans chaque état stationnaire A_k de μ elles ont des valeurs fixes moyennes, qui possèdent des probabilités déterminées. Afin d'étudier ces propriétés statistiques nous nous occuperons d'abord de la question des valeurs moyennes.

Comme nous avons vu

$$dW = w(x, y, z, t)\, dx\, dy\, dz = |\Psi|^2\, d\tau, \quad \int |\psi|^2\, d\tau = 1 \qquad (3)$$

représente la probabilité pour que le corpuscule μ se trouve dans le volume $d\tau$, l'intégrale dans la condition de normalisation étant prise dans tout le domaine de variation des coordonnées x, y, z. Il s'ensuit, en accord avec la théorie classique des probabilités, que la valeur moyenne d'une fonction $F(x, y, z)$ des coordonnées de μ sera donnée par l'expression

$$\overline{\mathcal{F}} = \int \mathcal{F} |\Psi|^2\, d\tau = \int \mathcal{F}(x, y, z)\, \Psi^*(x, y, z, t)\, \Psi(x, y, z, t) d\tau. \qquad (4)$$

Mais comment sera donnée la valeur moyenne d'une fonction $G(\boldsymbol{p})$ de l'impulsion $\boldsymbol{p}(p_x, p_y, p_z)$, ou des coordonnées et de l'impulsion ? Pour répondre à cette question, considérons d'abord le problème à une dimension suivant OX.

Dans le cas de mouvement mécanique de μ sur OX, si T est le temps de parcours d'un intervalle x_1, x_2 dans un sens déterminé, nous avons la « probabilité classique » de présence, donnée par [2, (11)], que nous écrirons ici à l'aide de la variable p_x,

$$w(x)\, dx = dt/T = dx/T U_x = (m/T)\, (dx/p_x) = C\, dx/p_x \qquad (5)$$

$$1 = \int_{x_1}^{x_2} w(x)\, dx = C \int_{x_1}^{x_2} \frac{dx}{p_x} = \frac{C}{m} T, \qquad C = m/T, \quad (5')$$

On a donc pour les valeurs moyennes classiques de deux fonctions données $F(x)$, $G(x, p_x)$ dans l'intervalle x_1, x_2 (les intégrales qui suivent sont toutes prises dans l'intervalle x_1, x_2)

$$\overline{\mathcal{F}} = \frac{m}{T} \int_{x_1}^{x_2} \frac{\mathcal{F}(x)\, dx}{p_x}, \quad \overline{G} = \frac{m}{T} \int_{x_1}^{x_2} \frac{G(x, p_x)\, dx}{p_x}. \qquad (6)$$

On aura plus spécialement pour l'impulsion p_x et pour sa $n^{\text{ième}}$ puissance

$$\overline{p_x} = \frac{m}{T} \int dx = \frac{m}{T} (x_2 - x_1) \qquad (7)$$

$$\overline{p_x^n} = \frac{m}{T} \int p_x^{n-1}\, dx \qquad (7')$$

et de même pour l'énergie cinétique $E_c = p_x^2/2m$ et l'énergie potentielle $E_p = U(x)$

$$\overline{E}_c = \frac{1}{2T} \int p_x\, dx, \qquad \overline{E}_p = \frac{m}{T} \int \frac{U(x)\, dx}{p_x}. \qquad (7_2)$$

D'un autre côté nous avons trouvé pour la solution f de l'équation de la probabilité en cas d'approximation classique [2, (37)]

$$f_x = \frac{C' \exp\left(\pm \frac{i}{\hbar} \int^x \sqrt{2m(E-U)}\, dx\right)}{\sqrt[4]{2m(E-U)}} = \frac{C' \exp\left(\frac{\pm i}{\hbar} \int^x p_x\, dx\right)}{\sqrt{p_x}} \qquad (8)$$

(C' est une constante), où, d'après [2, (59)] en prenant en (8) le signe $+$ pour fixer les idées,

$$\Psi(x, t) = \frac{C'}{\sqrt{p_x}} \exp\left(\pm \frac{i}{\hbar} \int^x p_x\, dx - 2\pi i \nu t\right). \qquad (9)$$

La condition de normalisation (5) donne

$$1 = \int |\Psi|^2\, dx = |C'|^2 \int \frac{dx}{p_x}$$

d'où, en comparant avec (5'), on trouve pour la constante C'

$$|C'|^2 = C_1 = m/T. \qquad (10)$$

Cherchons maintenant dans le cas de mouvement quantique la valeur moyenne de l'impulsion, en nous servant du principe de correspondance. La formule (4) donnant la valeur moyenne de la fonction $F(x)$ suggère la voie à suivre pour trouver la valeur moyenne de p_x. En effet la formule (4) appliquée à l'approximation classique Ψ(9) montre immédiatement que si l'on y remplace le facteur F par la dérivée par rapport à x appliquée à l'un des deux facteurs Ψ^* ou Ψ, la grandeur p_x disparaît sous l'intégrale, et la formule trouvée devient identique (à une constante multiplicative près) à la formule classique des valeurs moyennes (7). Alors, en utilisant (9) avec $|C'|^2$ tirée de (10), calculons l'intégrale suivante

$$\int \Psi^* \frac{\partial}{\partial x} \Psi\, dx$$
$$= |C'|^2 \int dx \frac{\exp\left(-\frac{i}{\hbar}\int^x p_x\, dx\right)}{\sqrt{p_x}} \frac{\partial}{\partial x} \frac{\exp\left(\frac{i}{\hbar}\int^x p_x\, dx\right)}{\sqrt{p_x}}$$
$$= \frac{m}{T} \int \frac{dx}{\sqrt{p_x}} e^- \left\{ -\frac{1}{2} \frac{1}{\sqrt{p_x^3}} \frac{dp_x}{dx} e^+ + \frac{i}{\hbar} \frac{p_x}{\sqrt{p_x}} e^+ \right\}$$
$$= \frac{m}{T} \int \left\{ -\frac{1}{2p_x^2} \frac{dp_x}{dx} + \frac{i}{\hbar} \right\} dx. \qquad (11)$$

On voit sur le dernier terme de l'égalité (11) que si $\hbar \to 0$, on aura le cas classique et le premier membre sous l'intégrale peut être négligé devant le second. On voit de plus que la formule limite déduite de (11) serait tout à fait identique à la formule classique (7) si l'on avait remplacé sous l'intégrale en (11) F par $(\hbar/i)\,(\partial/\partial x)$ au lieu de $\partial/\partial x$. Par conséquent on aura en approximation classique la formule connue (7) représentant la valeur moyenne classique $\overline{p}_x$, si l'on prend pour valeur moyenne quantique de

p_x la formule suivante, pareille à (4) (les intégrales qui suivent sont prises entre les limites $-\infty$ et $+\infty$)

$$\overline{p_x} = \int \Psi^* \mathbf{P}_x \Psi \, dx \tag{12}$$

où, P_x est l'opérateur suivant, correspondant à la grandeur mécanique p_x,

$$\mathbf{P}_x = (\hbar/i)\,(\partial/\partial x) = -i\hbar(\partial/\partial x). \tag{13}$$

D'un autre côté on vérifie immédiatement que si l'on avait interchangé en (12) les places de Ψ^* et de Ψ et calculé l'approximation classique de la valeur moyenne, on aurait trouvé la même $\overline{p_x}$ (7) à condition de remplacer en même temps P_x par P_x^*, c'est-à-dire on aurait

$$\overline{p_x} = \int \Psi \, \mathrm{P}_x^* \Psi^* \, dx. \tag{12'}$$

Les formules (12) et (12′) suggèrent la pensée que $\mathbf{P}_x$ est un opérateur hermitique.

Il est facile de voir qu'une formule de la forme de (12) est valable aussi pour la valeur moyenne de p^n, c'est-à-dire.

$$\overline{p_x^n} = \int \Psi^* \mathbf{P}_x^n \Psi \, dx, \qquad \mathbf{P}_x^n = (-i\hbar)^n \frac{\partial^n}{\partial x^n}. \tag{14}$$

En effet en effectuant en approximation classique un calcul semblable à (11) on voit qu'en ne retenant dans le développement sous l'intégrale que les membres d'ordre le plus bas par rapport à $\hbar$ (les membres proportionnels à $\hbar^n$, puisque $\hbar \to 0$), on trouve la valeur classique $\overline{p_x^n}(7_1)$.

De même on trouve à l'aide du principe de correspondance qu'une formule pareille à (12) ou à (14) est valable pour les valeurs moyennes $\overline{E_c}$, $\overline{E_p}$ (en utilisant (7_2), et aussi pour l'énergie totale $E(x, p_x) = E_c + E_p$. On aura ainsi pour $\overline{E}$

$$\overline{E} = \int \Psi^* \mathbf{E} \Psi \, dx,$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2m}\mathbf{P}_x^2 + \mathbf{U}(x) = -\frac{\hbar^2}{2m}\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \mathbf{U}(x). \tag{15}$$

On vérifie immédiatement la même formule aussi pour la valeur $\overline{G}$ de chaque fonction rationnelle entière $G(p_x)$ de p_x (et de même pour $G(x, p_x)$ en remplaçant dans (12) p_x par l'opérateur $G(\mathbf{P}_x)$.

Les dernières formules peuvent être généralisées facilement pour le cas de deux ou de trois dimensions (ainsi que pour plusieurs corpuscules) en se servant de l'indication naturelle que si le nombre des dimensions se réduit à un, les formules généralisées doivent passer en les formules données plus haut. Mais on peut aussi y arriver directement en partant du cas à trois dimensions à l'aide du principe de correspondance. Considérons par exemple le mouvement tridimensionnel du corpuscule μ sur une trajectoire 1, décrivant une fois pendant le temps T la distance sur 1 entre les points $M_0(x_0, y_0, z_0)$, $M(x, y, z)$. Prenons par exemple la formule de la moyenne classique [2, (11′)] pour l'énergie cinétique E_c

$$\overline{E}_c = \int_{M_0}^{M} \frac{p^2}{2m}\frac{1}{T}\frac{dl}{U} = \frac{1}{2T}\int_{M_0}^{M} P \, dl. \tag{16}$$

D'un autre côté on trouve sans peine dans le cas de trois dimensions pour l'approximation de la fonction Ψ[2 (59)] comme pour [2 (37)] l'expression

$$\Psi(x, y, z, t) = \frac{C}{\sqrt{p}} \exp\left(\pm \frac{i}{\hbar}\int_{M_0}^{M} \boldsymbol{p} \, d\boldsymbol{\tau}\right). \tag{16'}$$

Alors en utilisant pour $\bar{E}$ une formule semblable à (15), le calcul à l'aide de (16′) pour $\hbar \to 0$, comme dans le cas à une dimension, donnera la moyenne classique $\overline{E_c}$ (16), si maintenant on utilise les trois opérateurs suivants, généralisations de (13),

$$\mathbf{P}_x = -i\hbar(\partial/\partial x), \quad \mathbf{P}_y = -i\hbar(\partial/\partial y), \quad \mathbf{P}_z = -i\hbar(\partial/\partial z). \tag{17}$$

On aura ainsi la formule générale donnant $\overline{E_c}$

$$\overline{E_c} = \int \Psi^* \mathbf{E}_c \Psi \, d\tau, \qquad \mathbf{E}_c = \mathrm{P}^2/2m. \tag{18}$$

Dans chaque cas concret semblable au précédent on vérifie une formule semblable à (18).

Admettons maintenant qu'une grandeur mécanique déterminée B est donnée par une fonction entière rationnelle $B(x, y, z, p_x, p_y, p_z)$ des $x, \ldots p_x, \ldots$. D'après l'hypothèse faite au début, la grandeur B en chaque état de mouvement prend au cours du temps plusieurs valeurs chaotiques soumises à une distribution statistique. Dans chaque état stationnaire elles se groupent autour des valeurs moyennes déterminées b_k qui auront des probabilités déterminées. Nous admettrons que la valeur moyenne de B dans le cas général peut être trouvée de la façon suivante, suggérée des exemples concrets considérés et qui, dans le cas classique amènera, comme pour la fonction $G(x, p_x)$ en (6), à la valeur moyenne classique $\overline{B}$.

En remplaçant p_x, p_y, p_z dans B par les opérateurs (17), on trouve un opérateur linéaire $\mathbf{B}(x, \ldots, \mathbf{P}_x, \ldots)$. La valeur moyenne $\overline{B}$ sera donnée par l'expression suivante, semblable à (18),

$$\overline{B} = \int \Psi^* \mathbf{B}(x, \ldots, \mathbf{P}_x, \ldots) \Psi \, d\tau. \tag{19}$$

Nous supposons, comme cela a été vérifié dans des cas particuliers, que l'opérateur $\mathbf{B}$ est aussi hermitique. Donc la valeur moyenne $\overline{B}$ définie par (19) sera réelle, comme il est naturel de s'y attendre.

Mais comment pourrait-on calculer les valeurs moyennes b_k dans un état stationnaire donné A_i, c'est-à-dire ces valeurs de la grandeur B aux-

quelles nous avons admis qu'elles se réalisent en effet et qu'elles seront par conséquent trouvées dans l'expérience correspondante ? Le cas de l'énergie ($B = E$) qui dans un problème donné a des valeurs déterminées représentant des valeurs propres de l'équation différentielle (1) suggère l'affirmation suivante : soit **B** l'opérateur correspondant à B. Formons l'équation suivante du type (1)

$$\mathbf{B}q = bq \tag{20}$$

où $q(x, y, z)$ sont des fonctions déterminées dans un domaine correspondant et b — un paramètre. Alors les valeurs propres b_k de l'équation (20) sont les valeurs que prend la grandeur B dans les états stationnaires correspondants (en réalité b_k représente la valeur moyenne de B dans l'état stationnaire A_k, les différentes valeurs possibles de B dans cet état étant groupées autour de b_k). On peut appuyer l'affirmation précédente par les raisons supplémentaires suivantes :

1. L'hypothèse fondamentale dans le présent travail d'après laquelle un problème classique se transforme en problème quantique possédant des états stables et des énergies quantifiées, consistait en la décomposition du champ classique continu U en formations Φ_k composées par des corpuscules AS. Mais sur la dynamique intime de cette décomposition, la dynamique interne des Φ_k mêmes, ainsi que sur l'interaction entre les corpuscules AS et les Φ_k nous ne savons rien, et à cause de cela l'idée émise était formulée de manière très générale. Il est donc naturel d'élargir la supposition initiale, à savoir, que grâce aux facteurs encore inconnus, il existe un type plus compliqué de « quantification interne », propres aux formations Φ_k mêmes, qui impose des valeurs moyennes déterminées, c'est-à-dire des valeurs quantiques, aussi aux autres grandeurs mécaniques liées au corpuscule.

2. La solution de l'équation (1) en coordonnées convenables (par exemple en coordonnées polaires) se décompose dans certains cas en deux ou trois équations de une ou de deux variables (séparation des variables). Ces équations sont de même type que (20) et le paramètre à quantifier, qui y détermine les valeurs propres, correspond à une certaine grandeur mécanique appartenant au corpuscule μ. Il est naturel de penser qu'une telle équation pour la grandeur correspondante peut être directement écrite sous la forme (20).

Les probabilités mêmes avec lesquelles se réalisent les valeurs b_k de B, peuvent être trouvées de la manière suivante. Admettons pour simplifier que l'équation (20) a un spectre discontinu sans dégénérescence, b_k et q_k étant ses valeurs propres et fonctions propres. Les q_k forment un système complet, comme cela est connu par la théorie des opérateurs linéaires. Alors la fonction Ψ, solution de l'équation de probabilité [2, (60)], peut être développée en série suivant les b_k sous la forme suivante

$$\Psi(x, y, z, t) = \sum_m d_m(t)\, q_m(x, y, z). \tag{21}$$

En utilisant la condition de normalisation (3) et la formule des valeurs moyennes (19) on peut écrire

$$1 = \int |\Psi|^2 \,\mathrm{d}\tau = \sum_{m,n} d_m^*(t)\, d_n(t) \int q_m^*\, q_n \,\mathrm{d}\tau = \sum_m |d_m(0)|^2 \tag{22}$$

$$\overline{B} = \sum_{m,n} d_m^*(t)\, d_n(t) \int q_m^*\, \mathbf{B}\, q_n \,\mathrm{d}\tau = \sum_m b_m |d_m(0)|^2. \tag{23}$$

La comparaison de ces deux formules aux formules correspondantes de la théorie des probabilités montre que la constante $|d_m(t)|^2 = |d_m(0)|^2$ peut être considérée comme la probabilité de trouver la grandeur B en un état correspondant à l'indice m, de valeur b_m. (C'est naturellement, un résultat connu de la mécanique quantique, mais qui dérive logiquement de nos considérations précédentes.)

Appliquons encore la formule (19) à l'énergie E correspondant à un état stable fixe A_k du corpuscule μ. On aura, en utilisant (2) ($B = E$, $\boldsymbol{E} = \boldsymbol{H}$)

$$\overline{E} = \int \Psi_k^*\, \mathbf{E}\, \Psi_k \,\mathrm{d}\tau = \int f_k^*\, \mathbf{E}\, f_k \,\mathrm{d}\tau = E_k \int |f_k|^2 \,\mathrm{d}\tau = E_k \tag{24}$$

donc l'énergie E_k dans l'état A_k est la valeur moyenne de l'énergie totale de μ, ce qui est d'accord avec notre hypothèse de départ sur le caractère physique de la notion d'état stationnaire.

Les résultats exposés jusqu'à maintenant sur le mouvement quantique d'un microcorpuscule μ peuvent être résumés dans les affirmations générales suivantes, qui peuvent être acceptées comme des positions de départ et sur lesquelles peut être fondée la caractéristique quantique totale de la conduite du corpuscule μ.

A chaque grandeur mécanique $B(x, y, z, p_x, p_y, p_z)$, fonction de la position et de l'impulsion d'un microcorpuscule μ dans un champ $U(x, y, z)$, on fait correspondre un opérateur $\mathbf{B}(x, \ldots, \mathbf{P}_x \ldots)$ formé par les opérateurs $x, \ldots, \mathbf{P}_x, \ldots$ (17), en les remplaçant formellement dans la fonction B. **B** est un opérateur linéaire hermétique. A l'aide de **B** on forme l'équation (20), dont les valeurs propres représentent les valeurs quantifiées de B. Ces dernières se réalisent avec certaines probabilités données par les nombres $|d_m(t)|^2$ dans le développement (21). La probabilité de présence de μ dans le volume $d\tau$ est donné par $|\Psi|^2 d\tau$, où la fonction Ψ est une solution de l'équation de probabilité [2, (60)]. La valeur moyenne de B est donnée par l'expression (19).

Nous avons ainsi montré qu'en partant des hypothèses physiques exposées en (1), (2) s'ap-

puyant au fond sur l'hypothèse d'un support matériel du champ (subvac) possédant une certaine structure « atomique », on arrive, pour la description du comportement d'un microcorpuscule μ possédant à chaque instant une position et une vitesse déterminées, au formalisme mathématique de la mécanique quantique (donné ici en représentation « x »). On en déduit, par des moyens mathématiques connus, la théorie générale de la représentation, mais puisque son développement n'est pas lié à des moments physiques nouveaux et puisqu'elle est en réalité équivalente à la représentation « x », nous ne nous en occuperons pas ici.

B. La solution Ψ de l'équation de probabilité et l'onde Ψ attachée au corpuscule. — Dans les considérations précédentes, en cherchant la probabilité de distribution w et la fonction correspondante f ou Ψ caractérisant le mouvement d'un (ou de plusieurs) microcorpuscules μ, nous avons abouti à l'équation de probabilité pour f [2, (57)] ou pour Ψ [(2, (60)], qui sont identiques à l'équation de Schrödinger correspondante (équation d'amplitude ou équation temporelle). Pourtant les raisons physiques données ici pour construire les équations de probabilité [2, (57)], [2, (60)] sont tout à fait différentes de celles qui sont à la base de la mécanique ondulatoire de de Broglie-Schrödinger. Voilà pourquoi il ne serait pas sans intérêt de faire ici une comparaison de ces deux points de vue dans quelques cas typiques. Ils auront évidemment un traitement mathématique identique puisqu'ils conduisent aux solutions d'une même équation, mais d'un autre côté ils seront liés à des interprétations différentes.

Dans le cas à trois dimensions avec un champ $U(x, y, z)$ ne dépendant pas du temps, la solution de l'équation de probabilité [2, (60)] a la forme

$$\Psi(x, y, z, t) = g(x, y, z) \exp\frac{i}{\hbar}[\gamma(x, y, z) - Et]. \quad (25)$$

La fonction (25) a exactement la forme d'une onde qui se propage, d'amplitude g variable avec l'endroit et de phase

$$\varphi(x, y, z, t) = \frac{1}{\hbar}[\gamma(x, y, z) - Et]. \quad (25')$$

Ainsi la fonction Ψ introduite dans (2) comme un moyen mathématique approprié pour la description statistique de la conduite quantique du corpuscule en mouvement μ, est identique à la fonction d'onde Ψ de l'onde de Schrödinger attachée au corpuscule.

Admettons que le champ est constant et posons pour simplifier $U = 0$. Alors la solution de l'équation de probabilité prend la forme (C, constante, $\boldsymbol{r} = \boldsymbol{r}(x, y, z)$)

$$\Psi(x, y, z, t) = C \exp 2\pi i[(\boldsymbol{K}\boldsymbol{r}) - \nu t] \quad (26)$$

$$\boldsymbol{K} = \boldsymbol{K}_0 K, \quad K = 1/\lambda = mU/h.$$

Donc, en cas de mouvement uniforme de μ la fonction Ψ donnant la description statistique du mouvement quantique de μ est identique à la fonction d'onde de l'onde associée de Broglie de longueur $\lambda = h/mv$.

Considérons $\hbar$ comme un petit paramètre. Alors, comme nous l'avons montré, on trouve l'approximation classique de la probabilité w. A l'aide de la substitution $\Psi = \exp(iS/\hbar)$ et en développant S en série, $S = \sum_n (i\hbar)^n S_n$, on trouve comme pour (16) ($n = 0,1$)

$$\Psi(x, y, z, t) = \frac{1}{\sqrt[4]{2m(E - U)}} \exp\frac{i}{\hbar}(S_0 - Et),$$

$$S_0(x, y, z) = \int_{M_0}^{M} \sqrt{2m(E - U)}\, dl \quad (27)$$

où la fonction S_0 vérifie l'équation de Jacobi

$$\frac{1}{2m}(\text{grad } S_0)^2 + U = E. \quad (27')$$

L'apparition ici de la fonction S_0 de Jacobi satisfaisant à (27′) est une conséquence simple du principe de correspondance appliqué à l'équation de probabilité [2, (57)]. La même fonction S_0 apparaît comme une phase dans l'onde attachée à μ. On sait le rôle fondamental qu'à joué la mise en correspondance de la phase γ de l'onde en cas de validité de l'optique géométrique et la fonction S_0 de Jacobi pendant la création de la mécanique ondulatoire.

De même tous les problèmes stationnaires qui ramènent, comme nous l'avons montré, la détermination de la probabilité w aux fonctions propres de l'équation de probabilité [2, (57)], peuvent être interprétés dans le language de la théorie ondulatoire comme un résultat de phénomènes ondulatoires, où les états stationnaires A_k d'énergie E_k apparaissent comme conséquence mathématique d'interférence des ondes correspondantes, ne possédant pas un sens physique concret (phénomènes de résonance). Les cas de passage des corpuscules par des orifices (par exemple, expérience de Young, réseaux de diffraction, etc.), ainsi que les différents cas de propagation avec des obstacles présents (diffraction sur un cristal, diffusion sur la surface d'un milieu semi-transparent etc.), qui peuvent être traités en cherchant la probabilité de distribution correspondante $w = |\Psi|^2$ décrite par l'équation de probabilité [2, (60)], trouvent l'interprétation simple et naturelle d'interférence des ondes, comme cela se fait en général en mécanique ondulatoire.

Considérons le cas d'un mur de potentiel traité dans [1] d'une manière qualitative (pour simplifier nous considérons le mouvement à une dimension suivant OX, le mur étant au point $x = 0$). En remplaçant la variation brusque de $U(x)$ au point $x = 0$ par une variation rapide mais continue entre

les points $x_1 < 0$ et $x_2 > 0$ et puis en faisant $|x_2 - x_1| \to 0$ on trouve (comme il est connu) que $f(x)$ et $f'(x)$ sont continues pour $x = 0$. Cela permet de trouver la solution de l'équation de probabilité [2, (60)] pour chaque x et d'étudier complètement la distribution de la probabilité de présence $w(x)$ de μ (d'une façon analogue au cas d'une barrière de potentiel). Le même problème, lié au même traitement mathématique de l'équation de Schrödinger reçoit dans le langage de la théorie des ondes la représentation élégante bien connue de la théorie des barrières de potentiel.

En donnant en [1] une image qualitative du phénomène physique dans le subvac pendant le mouvement du corpuscule μ, nous avons introduit un domaine $\sum$ entourant μ, où il existe un phénomène représenté par deux ondes (φ_+, φ_-), ou bien une onde générale φ. C'est elle qui permet au corpuscule de connaître quel est le caractère du champ aux environs de sa trajectoire et d'influencer d'une certaine façon le mouvement de μ. De prime abord, cette onde a des propriétés et un rôle pareils à ceux de l'onde-pilote de de Broglie. Mais ces deux ondes ne sont pas identiques. En effet, on a essayé d'identifier l'onde-pilote avec l'onde Ψ attachée au corpuscule, ce qui a rencontré des difficultés insurmontables, tandis que l'onde $\varphi(\varphi_+, \varphi_-)$ correspond à un phénomène physique réel qui est un des facteurs responsables de la création de l'image statistique du phénomène décrit par la même fonction d'onde.

Ainsi la description mathématique de la distribution des probabilités des différentes grandeurs liées au mouvement quantique d'un microcorpuscule est-elle donnée par des fonctions de même nature que celles décrivant en physique classique la propagation d'ondes dans un milieu réel. Cette analogie merveilleuse évoque la grande unité intrinsèque des phénomènes appartenant à des domaines différents de la nature. Pourtant, comme chaque analogie, elle possède aussi un domaine de validité dont on devrait indiquer les limites. Nous reviendrons sur cette question à la fin de ce travail.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Datzeff (A. B.), *J. Physique Rad.*, 1959, **20**, 949.

[2] Datzeff (A. B.), *J. Physique Rad.*, 1960, **21**, 201.

EXCITONS DANS LES CRISTAUX DE TYPE WURTZITE

Par M. BALKANSKI,
Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure, Paris.
et
J. DES CLOIZEAUX, (1)
Centre d'Études Nucléaires, Saclay.

Résumé. — Une théorie générale des excitons est formulée du point de vue de la théorie de groupes. On considère en particulier le cas de formation optique des excitons dans le CdS. Dans le cas le plus simple chacune des bandes de valence donne lieu à une série d'excitons. Si l'on considère la structure complexe des bandes au voisinage du centre de la zone de Brillouin, on peut montrer que chaque état fondamental est séparé en un groupe de niveaux parmi lesquels le niveau Γ_1 et les 2 niveaux Γ_5 dans chaque groupe peuvent être créés optiquement en lumière polarisée ayant un vecteur électrique parallèle ou perpendiculaire à l'axe cristallin respectivement.

Abstract. — A general theory of excitons is formulated from point of view of the group theory. The particular case of optical exciton formation in CdS is considered. In the simplest case, each of the three valence bands gives one exciton series. If the complex band structure near the center of the Brillouin zone is considered, one can show that each exciton ground state splits in a group of levels, among which the Γ_1 level and the two Γ_5 levels can be created optically in light polarized parallel or perpendicular to the crystal axis respectively.

I. Introduction. — Dans les semiconducteurs et les cristaux ioniques, on observe souvent à basse température des raies ou bandes étroites au voisinage de la limite d'absorption. Ce phénomène général a été rencontré dans un grand nombre de cristaux [1]. En particulier, les spectres d'absorption pour le CdS, publiés par Gross et Jakobson [2] indiquent un nombre considérable de raies ou bandes (en tout 17) ; pour celles-ci, il y a dichroïsme comme pour la limite d'absorption

Ces raies sont souvent attribuées à la formation d'excitons : il en est de même parfois des raies de fluorescence que l'on observe aussi au voisinage de la limite d'absorption. Or, il semble qu'en fait, dans bien des cas ces raies doivent être attribuées à des impuretés du cristal ainsi que l'ont déjà remarqué Hopfield et Thomas [3].

En effet, il est très difficile de préparer des cristaux exempts de tout défaut ou impureté. Par ailleurs, il existe, quelques critères qui permettent de distinguer les raies d'impuretés des raies d'excitons.

Dans cet article, nous nous proposons d'étudier les caractères généraux des niveaux d'excitons dans un cristal et de montrer comment la théorie des groupes permet de classer ces niveaux et de prévoir la forme des fonctions d'onde associées aux excitons. Le cas du sulfure de cadmium sera traité à titre d'exemple. Nous en tirerons les règles de sélection relatives à la création d'excitons par excitation optique. De plus, nous examinerons comment la théorie doit être modifiée si l'on veut tenir compte du fait que les extrema des bandes de valence et de conduction ne se trouvent pas au centre de la zone de Brillouin [4].

II. Caractères généraux des excitons. — Avant d'aborder l'étude des excitons, il est bon de préciser les critères qui peuvent permettre de distinguer les raies d'impuretés des raies d'excitons.

1) Les niveaux d'impuretés sont plus profonds que les niveaux d'excitons, les raies d'excitons doivent donc apparaître au voisinage immédiat des limites d'absorption. En effet plaçons-nous par exemple dans l'approximation hydrogénoïde et soient m_c et m_v les masses effectives relatives aux bandes de valence et de conduction. La masse réduite μ associée aux niveaux d'excitons est donnée par la formule $1/\mu = 1/m_c + 1/m_v$ et par conséquent $\mu < m_c$ et $\mu < m_v$. Les énergies étant proportionnelles aux masses, les excitons seront moins liés que ne le sont des électrons autour des impuretés.

2) Lorsqu'il y a photoproduction d'excitons les raies d'absorption correspondantes doivent être très intenses, si la transition est permise ; dans tous les cas, elles doivent toujours être plus intenses que les raies dues aux impuretés. Le rapport des intensités varie en gros comme le rapport du nombre d'impuretés au nombre total des atomes du cristal.

3) Les raies d'excitons pourraient se trouver élargies lorsqu'elles correspondent à des transitions

(1) Actuellement School of Science and Engineering, La Jolla, Californie.

à partir d'une bande de valence profonde ou jusqu'à une bande de conduction élevée. En effet, dans ce cas, les niveaux sont métastables.

4) Enfin parfois on obtient des séries de raies d'absorption de caractère plus ou moins hydrogénoïde. Si ces raies sont dues à des excitons, les intensités varient rapidement avec le nombre quantique n ; en gros, comme l'a montré Elliott [5], elles diminuent comme $1/n^3$. Au contraire, si les raies sont dues à des impuretés, les intensités doivent varier lentement, simplement il peut y avoir élargissement des raies lorsque le nombre quantique n croît.

Par conséquent, si l'on observe en absorption des séries quasi-hydrogénoïdes comprenant un bon nombre de termes, on doit les attribuer à la présence d'impuretés dans le cristal.

Ces remarques permettent dans bien des cas de séparer les raies d'excitons des raies d'impuretés bien qu'il n'existe pas de critère absolu pour les distinguer. Les résultats observés dans le CdS, s'interprètent en supposant que les raies d'excitons sont dues à des transitions permises correspondant à des vecteurs d'onde de petit module (centre de la zone de Brillouin).

III. **États des excitons.** — Les photons incidents qui excitent les électrons hors de la bande de valence ne communiquent à ceux-ci qu'une quantité de mouvement très faible. On peut donc supposer que dans la transition les vecteurs d'onde sont conservés, le vecteur d'onde global de l'exciton formé sera donc nul.

Naturellement, il n'en est pas de même si dans la réaction, il y a émission ou absorption d'un phonon. Toutefois, les probabilités de transition sont alors faibles et ne peuvent donner lieu à des phénomènes observables que lorsque les transitions directes sont impossibles. Il en est ainsi si les extrema des bandes de valence et de conduction ne correspondent pas au même vecteur d'onde de la zone de Brillouin. Dans ce cas, il peut y avoir encore formation d'excitons, mais ceux-ci ne se traduisent pas par des raies mais par des bandes ; à chaque type d'exciton correspond alors une limite d'absorption bien définie (c'est le cas du germanium et du silicium). Bornons-nous à l'étude des transitions directes sans émission ni absorption de phonons.

Les excitations élémentaires du cristal, produites par action de la lumière, peuvent être classées en deux groupes : celles qui forment un spectre continu et qui correspondent à la création de porteurs libres et celles qui forment un spectre discret et qui correspondent aux excitons. Les fonctions d'onde associées aux niveaux d'excitons de moment total nul forment donc des représentations du groupe des symétries du cristal.

Un exciton étant associé à une transition entre un maximum d'une bande de valence, et un minimum d'une bande de conduction, il est très utile afin de classer les niveaux d'excitons, d'étudier les relations entre les propriétés de symétries attachées aux fonctions d'onde des excitons et les propriétés de symétries relatives aux transitions. Examinons cette question en détails et précisons d'abord la forme d'un état d'exciton.

a) Représentations générales des états. — Soit Φ_0 l'état de base du cristal. Soit C^+_{nk} et C_{nk} les opérateurs de création et d'annihilation relatifs à la bande de valence de type n et soit de même C^+_{mk} et C_{mk} les opérateurs associés à la bande de conduction de type m.

Un état d'exciton pourra être représenté par la fonction

$$\Phi = [\Sigma_{mnk} F_{mnk} C^+_{mk} C_{nk}] \Phi_0. \quad (1)$$

La fonction F_{mnk} est une fonction d'onde dans l'espace des $\boldsymbol{k}$. La normalisation de l'état Φ implique alors la condition

$$\Sigma_{mnk}|F_{mnk}|^2 = 1. \quad (2)$$

Remarquons que lorsque nous écrivons la fonction Φ sous la forme (1) nous ne nous plaçons pas dans l'approximation de Hartree-Fock, valable pour un système de particules indépendantes. De toutes façons, les excitons étant des excitations collectives comme les plasmons, ne peuvent être décrits dans cette approximation. Au contraire, nous supposons que les états de la bande de valence et de conduction sont relatifs à des électrons et des trous habillés.

Cet habillage des électrons et des trous peut théoriquement être réalisé en effectuant une transformation canonique sur les fonctions d'onde relatives à l'approximation des particules indépendantes. Cette transformation canonique qui tient compte des phénomènes de corrélation a pour but d'éliminer de l'hamiltonien d'interaction entre électrons et trous, les éléments de matrice correspondant aux transitions virtuelles suivantes : création ou absorption simultanée de deux paires électron-trou, création ou absorption d'une paire électron-trou et diffusion simultanée d'un électron ou d'un trou.

L'hamiltonien résultant conserve alors séparément le nombre des électrons et le nombre des trous (sauf ce qui concerne les transitions réelles) c'est ce qui explique que l'on puisse écrire les fonctions Φ sous la forme (1).

L'interaction entre vraies particules habillées se traduit alors par l'existence d'une constante diélectrique. Ce processus est équivalent à la renormalisation des masses et des charges en électrodynamique quantique. Cet habillage des particules ne modifie d'ailleurs pas les propriétés de symétrie des fonctions d'onde. Les excitons sont alors des

excitations collectives représentées par les fonctions Φ qui appartiennent au spectre discret. Remarquons que les plasmons sont définis de façon analogue et peuvent aussi être représentés par des fonctions de la forme Φ. Excitons et plasmons ne se distinguent que par les propriétés suivantes : les niveaux d'excitons sont situés au-dessous de l'ensemble continu des excitations individuelles, alors que les plasmons sont situés au-dessus [6] (*fig.* 1).

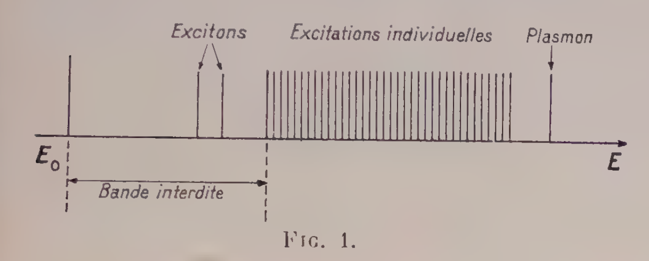


FIG. 1.

Examinons les propriétés de symétrie des excitons, cette étude permettra de préciser la forme des fonctions F_{mnk}.

b) TRANSFORMATION DES FONCTIONS F_{mnk}. — Les fonctions Φ forment des représentations irréductibles du groupe des symétries du cristal. La théorie des groupes va donc nous permettre de classer les différents niveaux d'excitons et de prévoir la forme des états correspondants. Pour plus de clarté, nous résumons dans l'appendice les notions et les principaux résultats de théorie des groupes, qui sont utilisés dans cet article.

Soit T l'une de ces opérations de symétrie du cristal ; elle transforme les bandes n en n' ; m en m' et le vecteur $\boldsymbol{k}$ en $\boldsymbol{k}'$, Φ_0 reste naturellement invariant puisque l'état de base est supposé non dégénéré.

$$T\Phi = \Sigma_{mnk} F_{mnk} C^{+}_{m'k'} C_{n'k'} \Phi_0 \quad (3)$$

mais nous pourrons aussi bien écrire :

$$T^{-1} \Phi = \Sigma_{mnk} F_{m'n'k'} C^{+}_{mk} C_{nk} \Phi_0. \quad (4)$$

Posons alors

$$\Phi_{mnk} = C^{+}_{mk} C_{nk} \Phi_0. \quad (5)$$

Nous voyons qu'au lieu de transformer les états Φ_{mnk} on peut tout aussi bien transformer les fonctions $F_{m'n'k'}$. Autrement dit, il est équivalent d'effectuer une opération de symétrie sur le cristal, ou d'effectuer la transformation inverse sur les axes de coordonnées. Faisons alors tendre $\boldsymbol{k}$ vers zéro, en ayant soin de garder au vecteur $\boldsymbol{k}$ une direction fixe.

Cette direction sera définie par le vecteur unitaire $\boldsymbol{u}$ ($\boldsymbol{k} = \boldsymbol{u}k$).

Les états $\Phi_{mn\boldsymbol{k}}$ et $\Phi_{m'n'\boldsymbol{k}'}$ lorsque $\boldsymbol{k} \to 0$ vont tendre vers deux états $\Phi_{mn}(\boldsymbol{u})$ et $\Phi_{m'n'}(\boldsymbol{u})$ dégénérés, dans l'approximation des bandes, puisqu'ils se déduisent l'un de l'autre par symétrie.

De même les fonctions à un électron $\psi_{mk}(\boldsymbol{r})$ et $\psi_{nk}(\boldsymbol{r})$ vont tendre respectivement vers des fonctions $\psi_{m(\boldsymbol{u})}(\boldsymbol{r})$ et $\psi_{n(\boldsymbol{u})}(\boldsymbol{r})$ lorsque $\boldsymbol{k} \to 0$.

Les états $\Phi_{mn}(\boldsymbol{u})$ se transforment comme le produit des fonctions à un électron

$$\psi_{m(\boldsymbol{u})}(\boldsymbol{r}) \; \psi^{*}_{n(\boldsymbol{u})}(\boldsymbol{r}).$$

En effet les opérations C^{+}_{mk} et C_{nk} se transforment comme $\psi_{mk}(\boldsymbol{r})$ et $\psi^{*}_{nk}(\boldsymbol{r})$ respectivement [7].

Les représentations associées aux états $\Phi_{mn}(\boldsymbol{u})$ sont donc obtenues comme le produit des représentations $\overline{\Gamma}_v$ et Γ_c associées respectivement à la bande de valence et à la bande de conduction pour $\boldsymbol{k} = 0$.

Remarquons toutefois que les fonctions $\Phi_{mn}(\boldsymbol{u})$ dépendent encore de la direction du vecteur $\boldsymbol{k}$. Choisissons alors dans les représentations Γ_c et Γ_v ($\boldsymbol{k} = 0$) une base unique de fonctions φ : soient respectivement φ_μ et φ_ν les fonctions de base. Ce choix fixe le sens de l'expression $\Phi_{\mu\nu 0}$.

Nous aurons :

$$\Phi_{\mu\nu 0} = C^{+}_{\mu,0} \, C_{\nu,0} \, \Phi_0. \quad (6)$$

Nous définirons alors de nouvelles fonctions $\Phi_{\mu\nu k}$ en fonction des anciennes Φ_{mnk} par les relations :

$$\Phi_{\mu\nu k} = \Sigma_{mn} \, a_{\mu m}(\boldsymbol{u}) \, b_{\nu n}(\boldsymbol{u}) \, \Phi_{mnk}. \quad (7)$$

Les coefficients a et b sont choisis de telle manière que $\Phi_{\mu\nu k}$ tende vers $\Phi_{\mu\nu 0}$ lorsque $\boldsymbol{k} \to 0$.

Remarquons que les bandes m et n étant définies par continuité dans l'espace des $\boldsymbol{k}$, l'état Φ_{mnk} peut s'interpréter comme un état obtenu en faisant passer un électron de vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ de la bande de valence n, dans la bande de conduction m. L'interprétation de $\Phi_{\mu\nu k}$ est moins directe, $\Phi_{\mu\nu k}$ étant essentiellement fixé par le choix d'ailleurs arbitraire de la base φ_μ, φ_ν. Les indices μ et ν ne correspondent plus alors exactement aux bandes d'énergies, mais ceci importe peu. Par ailleurs $\Phi_{\mu\nu k}$ doit rester normée.

Ce calcul montre clairement que lorsque plusieurs bandes de valence ou de conduction sont dégénérées au centre de la zone de Brillouin, l'état excité doit comporter des contributions de différentes bandes. Dans ce cas, on ne peut plus faire correspondre à chaque état d'exciton une transition simple entre une seule bande de valence et une seule bande de conduction ; l'exciton mélange les fonctions associées aux porteurs de même type et de masses effectives différentes.

c) CARACTÈRES DE SYMÉTRIE DES FONCTIONS D'ONDE DES EXCITONS. — Nous allons maintenant nous attacher à exprimer la fonction d'onde de l'exciton formé par le mélange de différentes bandes de façon analytique en nous basant sur la théorie des groupes. Cette étude nous permettra en particulier de montrer que les représentations Γ_e des différents niveaux d'excitons sont obtenus comme

le produit des représentations Γ_c et Γ_v associées aux extrema de la bande de conduction et de la bande de valence pour $\boldsymbol{k} = 0$ et des représentations Γ_b que l'on peut associer aux « fonctions d'onde spatiales ». Physiquement, l'existence de ces fonctions d'ondes spatiales est due au fait que dans l'exciton, l'électron et le trou forment un ensemble lié représenté par une fonction d'onde localisée, alors que la polarisation due à cet ensemble est une onde plane qui se propage librement dans le cristal. Dans l'espace réciproque, ces fonctions d'onde spatiales $d_{\boldsymbol{k}}$ sont de simples fonctions du vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ et ne dépendent pas des symétries des bandes. Leurs propriétés de symétrie intrinsèques découlent uniquement de leur forme analytique en $\boldsymbol{k}$.

En résumé, nous allons montrer l'équivalence :

$$\Sigma\Gamma_e = \overline{\Gamma}_v \times \Gamma_c \times \Sigma\Gamma_b. \tag{8}$$

Utilisons alors la nouvelle représentation dans laquelle les états propres des excitons sont exprimés comme une combinaison linéaire des états $\Phi_{\mu\nu k}$. Un exciton associé à la représentation Γ_e est défini par la fonction $F^{e.\varepsilon}_{\mu\nu k}$ qui se transforme comme le vecteur de base ε, appartenant à la représentation Γ_e. Nous allons chercher à l'exprimer sous la forme d'une série, chaque terme de la série étant le produit d'une fonction des coefficients μ et ν et d'une fonction de vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$. Tout d'abord, nous pourrons construire à partir des états $\Phi_{\mu\nu k}$ des combinaisons linéaires $\Phi_k(a, \alpha)$ qui se transforment comme les variables x_α attachées à la représentation Γ_a avec $\Gamma_a \subset \Gamma_c \times \overline{\Gamma}_v$.

Si la représentation Γ_a est contenue n fois dans le produit $\Gamma_c \times \overline{\Gamma}_v$, on peut obtenir n groupes de combinaisons linéaires indépendantes $\Phi_k(a_1, \alpha_1)$, . $\Phi_k(a_n, \alpha_n)$. Dans la suite, pour simplifier nous écrirons simplement $\Phi_n(a, \alpha)$ sans oublier que ce symbole peut englober plusieurs groupes d'états associés à des représentations isomorphes Γ_a.

$$\Phi^{a.\alpha}_k = \Sigma_{\mu\nu} f^{a.\alpha}_{\mu\nu} \Phi_{\mu\nu k}. \tag{9}$$

Les coefficients $f^{a.\alpha}_{\mu\nu}$ sont tout simplement égaux aux coefficients de Clebsh-Gordon généralisés.

$$f^{a.\alpha}_{\mu\nu} = C(a, \alpha ; c, \mu ; \overline{\nu}, \nu). \tag{10}$$

Les fonctions $\Phi^{a.\alpha}_k$ sont évidemment normées et par conséquent :

$$\sum_{\mu\nu} |f^{a.\alpha}_{\mu.\nu}|^2 = 1. \tag{11}$$

Nous introduirons par ailleurs des fonctions ordinaires $g(\boldsymbol{k})$. Une opération de symétrie en transformant les vecteurs $\boldsymbol{k}$, transforme aussi les fonctions $g(\boldsymbol{k})$. Désignons par la notation $g^{b\beta}(\boldsymbol{k})$ les fonctions $g(\boldsymbol{k})$ qui par suite de leur dépendance vis-à-vis de $\boldsymbol{k}$, se transforment comme les variables x_β attachées à la représentation Γ_b. Remarquons que l'ensemble des fonctions $g^{b\beta}(\boldsymbol{k})$ forme un système complet. Comme les fonctions $g^{b\beta}(\boldsymbol{k})$ sont des fonctions très générales, chacune de ces fonctions sera repérée par une indice particulier convenable.

Pour comprendre exactement la signification des fonctions $g^{b\beta}(\boldsymbol{k})$ il suffit de remplacer le groupe des symétries du cristal par le groupe complet des rotations. Les fonctions $g^{b\beta}(\boldsymbol{k})$ deviennent alors des fonctions s, p, d, etc. et les indices b et β doivent être identifiés avec les nombres quantiques habituels l et m.

Tout état d'exciton se transformant comme la variable x_ε attachée à la représentation Γ_e peut s'exprimer en fonction des états $\Phi^{a.\alpha}_k$ définis ci-dessus et de certaines fonctions $g^{b\beta}_a(\boldsymbol{k})$.

$$\Phi^{e.\varepsilon} = \sum_k \sum_{\Gamma_e \in \Gamma_a \times \Gamma_b} C(e\varepsilon ; a, \alpha ; b\beta)\, g^{b.\beta}_a(\boldsymbol{k})\, \Phi^{a\alpha}_k. \tag{12}$$

Ce qui revient à poser :

$$F^{e\varepsilon}_{\mu\nu k} = \sum_{\Gamma_e \in \Gamma_a \times \Gamma_b} C(e\varepsilon ; a, \alpha ; b\beta)\, f^{a.\alpha}_{\mu.\nu}\, g^{b\beta}_a(\boldsymbol{k}). \tag{13}$$

Les seules quantités non calculables en théorie des groupes sont les fonctions $g^{b\beta}_a(\boldsymbol{k})$. Ce sont les « fonctions d'onde spatiales » de l'exciton. Pour les évaluer il faut résoudre l'équation de Schrödinger relative à l'exciton.

Remarquons que les fonctions d'ondes spatiales $g^{b.\beta}_a(\boldsymbol{k})$ doivent obéir à des conditions de normalisation. Nous pourrons poser :

$$\sum_k |g^{b.\beta}_a(\boldsymbol{k})|^2 = G_{ab}. \tag{14}$$

Remarquons aussi que la norme G_{ab} doit être indépendante de l'indice β puisque les fonctions $g^{b.\beta}_a(\boldsymbol{k})$ forment une base pour la représentation Γ_b.

Par ailleurs, l'état $\Phi^{e.\varepsilon}$ devant être normé, nous aurons :

$$\sum_{\mu\nu k} |F^{e\varepsilon}_{\mu\nu k}|^2 = 1. \tag{15}$$

Cette condition implique la relation suivante :

$$\sum_{\Gamma_e \in \Gamma_a \times \Gamma_b} G_{ab} = 1.$$

Les normales G_{ab} mesurent la fraction de l'état de l'exciton associée au produit des représentations $(\Gamma_a \times \Gamma_b)$. La représentation Γ_a est l'une des représentations irréductibles du produit $\Gamma_c \times \overline{\Gamma}_v$; elle est liée à la symétrie intrinsèque d'une paire électron-trou. La représentation Γ_b est associée aux fonctions d'onde spatiale $g^{b\beta}(\boldsymbol{k})$.

Pour un exciton pur, nous aurions d'ailleurs simplement :

$$G_{ab} = \delta_{a,a_0}\, \delta_{b,b_0}. \tag{16}$$

Dans ce cas, l'exciton ne possède qu'un seul groupe de fonctions spatiales $g^{b_0.\beta}(\boldsymbol{k})$ et toutes ces fonctions se déduisent les unes des autres par symétrie.

A partir des représentations Γ_{a_0} et Γ_{b_0} nous

pouvons construire une série d'états d'excitons purs de représentation Γ_e avec :

$$\Sigma\Gamma_e = \Gamma_{a_0} \times \Gamma_{b_0}. \quad (17)$$

En réalité, les fonctions propres des excitons de représentation Γ_e sont formés par des combinaisons linéaires des états d'excitons purs appartenant à la même représentation Γ_e. Le mélange des divers états ne change pas le nombre des niveaux et par conséquent nous aurons toujours :

$$\Sigma\Gamma_e = \sum_{a,b} \Gamma_a \times \Gamma_b = \overline{\Gamma}_v \times \Gamma_c \times \Sigma\Gamma_b. \quad (18)$$

Il est à remarquer d'ailleurs que si les masses effectives des diverses bandes de valence et des diverses bandes de conduction dégénérées pour $k = 0$, sont très différentes, les états des excitons sont presque purs. Ces remarques permettent de classer les niveaux d'excitons.

IV. **Photoproduction des excitons.** — L'hamiltonien extérieur associé à l'action de la lumière incidente sur les électrons, s'écrit :

$$H_e = -(e/c)\, A(\boldsymbol{\xi}.\boldsymbol{v}) \quad (19)$$

$\boldsymbol{\xi}$ est le vecteur polarisation et A le module du potentiel vecteur. L'opérateur $\boldsymbol{v}$ est l'opérateur vitesse et peut s'exprimer facilement en deuxième quantification.

L'expression de H_e est absolument générale. En particulier elle reste valable si l'on tient compte des phénomènes de corrélations et des interactions spin-orbite. Dans le cristal, nous pouvons exprimer H_e sous une forme un peu différente :

$$H_e = -e/c\, A \sum \bar{\xi}^{a,\alpha}\, v^{a,\alpha}. \quad (20)$$

Les opérateurs $v^{a,\alpha}$ sont des combinaisons linéaires des opérateurs v_x, v_y, et v_z, ils se transforment comme les variables x_α de la représentation Γ_a. L'opérateur H_e devenant invariant pour toute transformation du cristal, il s'ensuit que les coefficients $\bar{\boldsymbol{\xi}}^{a,\alpha}$ se transforment comme les variables $\bar{x}_\alpha$ de la représentation conjuguée $\overline{\Gamma}_a$ (les représentations Γ_a et $\overline{\Gamma}_a$ peuvent être confondues) les opérateurs $v^{a,\alpha}$ peuvent s'exprimer facilement en théorie de la deuxième quantification. La probabilité de formation d'un exciton représenté par l'état $\Phi^{e,\varepsilon}$ s'écrit immédiatement :

$$P = \hbar^{-2} |< \Phi^{e\varepsilon} | H_e | \Phi_0 >|^2. \quad (21)$$

En exprimant H_e de manière explicite, on obtient :

$$P = \frac{e^2}{\hbar^2 c^2} A^2\, |\bar{\xi}^{e,\varepsilon}|^2 |< \Phi^{e,\varepsilon} | v^{e,\varepsilon} | \Phi_0 >|^2. \quad (22)$$

En effet, les fonctions propres de l'hamiltonien H forment une base orthonormée pour les représentations irréductibles associées au groupe des symétries du cristal. Or la fonction $v^{a,\alpha}|\Phi_0>$ peut être développée par rapport aux fonctions propres qui appartiennent à la même représentation Γ_a et qui se transforment comme la variable x_α liée à cette représentation. Par conséquent, elle est orthogonale à toutes les fonctions appartenant à d'autres représentations Γ_b, ou même correspondant à d'autres variables x_β de la même représentation Γ_a.

L'égalité (4) entraîne la règle de sélection suivante. Pour qu'un exciton soit créé dans un état $\Phi^{e,\varepsilon}$ appartenant à la représentation Γ_e, il faut que certaines combinaisons linéaires des composantes du vecteur $\boldsymbol{\xi}$ forment une base pour la représentation $\overline{\Gamma}_e$.

Nous pouvons appliquer cette règle au cas du sulfure de cadmium. Pour ce cristal, au centre de la zone de Brillouin, nous avons toujours $\overline{\Gamma}_j = \Gamma_j$.

Les combinaisons linéaires des composantes de $\boldsymbol{\xi}$ appartiennent à deux représentations Γ_5 et Γ_1.

$$\Gamma_5 \left| \begin{array}{l} \bar{\xi}^{5,1} = \xi - = (\xi_x - i\xi_y)/\sqrt{2} \\ \bar{\xi}^{5,2} = \xi + = (\xi_x + i\xi_y)/\sqrt{2} \end{array} \right. \quad (24)$$

$$\Gamma_1\; \bar{\xi}^{1,1} = \xi_z.$$

Par conséquent, par irradiation optique, nous ne pouvons créer, par transition directe, que des états d'exciton appartenant aux représentations Γ_1 et Γ_5.

En particulier : pour une polarisation perpendiculaire à l'axe du cristal ($\xi_z = 0$), on obtient des états Γ_5 ; pour une polarisation parallèle à l'axe du cristal ($\xi_x = \xi_y = 0$), on obtient des états Γ_1.

Cette remarque permet de classer les transitions permises. Toutefois, nous pouvons être encore plus restrictif. Exprimons en effet $\Phi^{e,\varepsilon}$ par rapport aux états $\Phi_k^{a,\alpha}$.

$$P = \frac{e^2}{\hbar^2 c^2} A^2 |\bar{\xi}^{e,\varepsilon}|^2 \sum_{k,ab} \Gamma_{e\,\varepsilon}\Gamma_a \times \Gamma_b C^*(e\varepsilon\,;\; a\alpha\,;\; b\beta)\; g_a^{*b\beta}(\boldsymbol{k}) < \Phi_k^{a,\alpha} | v^{e\varepsilon} | \Phi_0 >|^2. \quad (24)$$

Si l'exciton n'est pas localisé, c'est-à-dire si la distance moyenne entre l'électron et le trou est grande par rapport aux dimensions de la maille cristalline, les modules des fonctions $g_a^{b,\beta}(\boldsymbol{k})$ ne possèdent de valeurs importantes que pour des vecteurs $\boldsymbol{k}$ petits par rapport aux dimensions de la zone de Brillouin. Pour que cette condition soit réalisée, il faut que les masses effectives des bandes de valence et de conduction soient faibles et que la constante diélectrique soit importante, ce qui indique que les excitons sont faiblement liés. Dans ce cas, seuls contribuent à la probabilité de transition, les éléments de matrice $< \Phi_k^{a\alpha} | v^{e\varepsilon} | \Phi_0 >$ correspondant à des vecteurs $\boldsymbol{k}$ de petit module.

Nous posons alors :

$$< \Phi_k^{a,\alpha} | v^{e,\varepsilon} | \Phi_0 > \simeq < \Phi_0^{a,\alpha} | v^{e,\varepsilon} | \Phi_0 >. \quad (25)$$

Nous pouvons alors calculer une valeur approchée de la probabilité de transition ; l'approximation faite est exactement la même que celle qu'a utilisée

Elliott [8] pour le calcul des probabilités de création d'excitons dans le modèle hydrogénoïde.

Mais l'élément de matrice $< \Phi_0^{a,\alpha} | v^{e,\varepsilon} | \Phi_0 >$ est indépendant de $\boldsymbol{k}$; il est donc nul si les représentations Γ_a et Γ_e sont différentes et plus spécialement si les indices (a, α) et (e, ε) ne coïncident pas.

Nous poserons :

$$< \Phi_0^{e,\varepsilon} | v^{e,\varepsilon} | \Phi_0 > = M_e. \tag{25a}$$

La probabilité de transition P s'écrit donc dans cette approximation :

$$P = \frac{e^2}{\hbar^2 c^2} A^2 |\xi^{e\varepsilon}|^2 \sum_{k,b} \Gamma_e \varepsilon \Gamma_a \times \Gamma_b C^*(e\varepsilon ; e, \varepsilon ; b\beta)\, g_e^{*b,\beta}(\boldsymbol{k}) M_e|^2. \tag{26}$$

La représentation Γ_b qui figure dans (25) est forcément la représentation unité Γ_1 ; à cette représentation correspond alors une fonction $g_e^1(\boldsymbol{k})$ qui pour toutes les symétries du cristal se comporte comme un scalaire.

Finalement, nous arrivons au résultat simple suivant :

$$P = \frac{e^2}{\hbar^2 c^2} A^2 |\xi^{e,\varepsilon}|^2 \left| M_e \sum_k g_e^1(\boldsymbol{k}) \right|^2. \tag{27}$$

Pour que la probabilité de transition ne soit pas négligeable, il faut non seulement que la représentation Γ_e soit compatible avec une transition optique directe mais encore que la représentation Γ_e soit contenue dans le produit des représentations $(\Gamma_c \times \overline{\Gamma_v})$.

Ces conditions suffisent à déterminer les transitions interdites, si les excitons sont composés. Si les excitons sont purs ou presque purs, il faut de plus s'assurer que les fonctions $g_e^l(\boldsymbol{k})$ ne sont pas nulles ou négligeables. Dans ce dernier cas, le nombre de transitions permises est encore restreint.

Remarquons enfin que la représentation Γ_e peut figurer plusieurs fois dans le produit $(\Gamma_c \times \overline{\Gamma_v})$. S'il en est ainsi, et si elle y figure n fois, nous pourrons faire correspondre à ces n représentations équivalentes, n éléments de matrices M_{e_j} et n fonctions $g_{e_j}^1(\boldsymbol{k})$ la probabilité de transition s'écrit alors :

$$P = \frac{e^2}{\hbar^2 c^2} A^2 |\xi^{e,\varepsilon}|^2 \left| \sum_j M_{ej} \sum_k g_{ej}^1(\boldsymbol{k}) \right|^2. \tag{28}$$

Comme application, nous considérons les niveaux d'excitons dans le sulfure de cadmium. L'égalité $\sum \Gamma_e = \overline{\Gamma_v} \times \Gamma_c \times \sum \Gamma_b$ permet de les classer. Les résultats sont résumés dans le tableau I. (Les niveaux d'excitons de la colonne s du tableau I ont déjà été donnés par Wheeler [9].)

TABLEAU I

Transition donnant lieu a la formation d'excitons			Représentations associées aux transitions bande a bande	Représentations des fonctions d'ondes spatiales $g(k)$ Γ_b					
				s	p		d		
	$\overline{\Gamma_v}$	Γ_c	$\overline{\Gamma_v} \times \Gamma_c$	Γ_1	Γ_1	Γ_5	Γ_1	Γ_5	Γ_6
I	Γ_9	Γ_7	Γ_5	$\underline{\Gamma_5}$	$\underline{\Gamma_5}$	Γ_1 Γ_2 Γ_6	$\underline{\Gamma_5}$	Γ_1 Γ_2 Γ_6	Γ_3 Γ_4 Γ_5
			Γ_6	Γ_6	Γ_6	Γ_3 Γ_4 Γ_5	Γ_6	Γ_3 Γ_4 Γ_5	Γ_1 Γ_2 Γ_6
II	Γ_7	Γ_7	Γ_5	$\underline{\Gamma_5}$	$\underline{\Gamma_5}$	Γ_1 Γ_2 Γ_6	$\underline{\Gamma_5}$	Γ_1 Γ_2 Γ_6	Γ_3 Γ_4 Γ_5
			Γ_1	$\underline{\Gamma_1}$	$\underline{\Gamma_1}$	Γ_5	$\underline{\Gamma_1}$	Γ_5	Γ_6
III	Γ_7	Γ_7	Γ_2	Γ_2	Γ_2	Γ_5	Γ_2	Γ_5	Γ_6

Seuls pourront être créés par des transitions optiques directes les états Γ_1 (pour $\xi_z \neq 0$) et les états Γ_5 (pour $\xi_x^2 + \xi_y^2 \neq 0$).

Les niveaux soulignés dans le tableau I sont les niveaux permis dans l'approximation des excitons faiblement liés à condition de supposer que les excitons formés sont tous simples. Remarquons toutefois que les probabilités de création d'excitons doivent être plus fortes pour les niveaux $\Gamma_5(s)$ et $\Gamma_1(s)$ que pour les niveaux $\Gamma_5(d)$ et $\Gamma_1(d)$ et surtout les niveaux $\Gamma_5(p)$ et $\Gamma_1(p)$. En effet des transitions optiques ne sont permises dans ces cas qu'à cause de l'influence perturbatrice du champ cristallin et du couplage spin-orbite. Par ailleurs, nous voyons que l'état s étant le plus symétrique doit être le plus lié ; en conséquence, si une transition est permise au centre de la zone de Brillouin, on doit toujours observer le niveau le plus bas d'exciton. C'est donc l'état s qui donnera lieu à l'absorption la plus intense et dans bien des cas le premier niveau s sera le seul observable par transmission. On peut s'en rendre compte en considérant la formule (27). En effet, si l'on définit la fonction enveloppe :

$$F(r) = \sum_k e^{i\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}} g_e^1(\boldsymbol{k})$$

on voit que la quantité

$$F(0) = \sum_k g_e^1(\boldsymbol{k})$$

qui figure dans l'égalité (27) doit bien être maximum pour le premier état $l\ s$ pour lequel l'orbite est la plus petite.

V. Influence de la forme des bandes sur la structure des niveaux d'excitons. — La classification des niveaux d'excitons donnée au paragraphe précédent suppose implicitement que les fonctions $Q^{b\beta}(\boldsymbol{k})$ introduites précédemment ne possèdent de valeurs appréciables qu'au voisinage de $\boldsymbol{k} = 0$. En fait, il arrive souvent que les extrema des bandes de valence et de conduction ne coïncident pas avec le centre de la zone de Brillouin. Dans certains cas, il est encore possible de créer des excitons par transition directe, mais alors la classification des niveaux d'excitons doit être modifiée, car il faut tenir compte des contributions des différentes branches des bandes en dehors du centre de la zone de Brillouin. Cette situation se présente dans le sulfure de cadmium. Nous avons montré dans un précédent article [4] que les extrema des bandes ne coïncident pas avec le centre de la zone ($k = 0$), mais se trouvent au voisinage de celui-ci. Lorsqu'un électron de vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ passe de la nappe j de la bande de valence à la nappe l de la bande de conduction, son énergie cinétique (énergie dans l'approximation des bandes) varie de la quantité $e(\boldsymbol{k})$.

$$e(\boldsymbol{k}) = E_{c,l}(\boldsymbol{k}) - E_{v,j}(\boldsymbol{k}).$$

Référons-nous à la structure de bande donnée dans un précédent article [4] (*fig.* 4) et considérons les transitions qui ne font intervenir qu'une bande de valence et une bande de conduction, chacune des bandes étant formée de deux nappes qui se coupent au centre de la zone de Brillouin. Les variations des énergies $e(\boldsymbol{k})$ suivant les directions des trois axes Ok_x, Ok_y et Ok_z sont représentées sur la figure 2.

Les points e_1, e_2, e'_1 et e'_2 qui figurent sur les

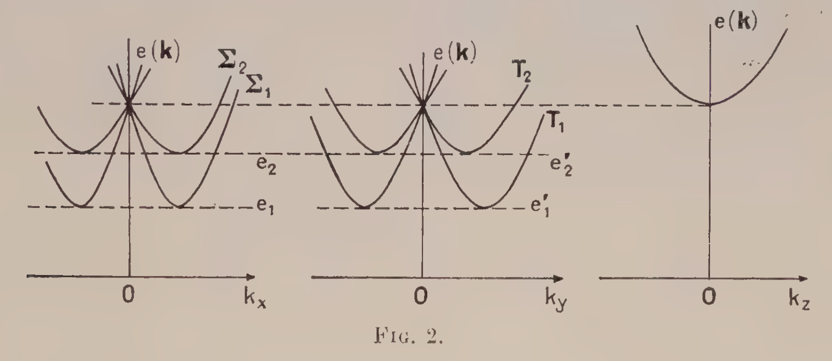


Fig. 2.

courbes correspondent à des extrema de la fonction $e(\boldsymbol{k})$ ces extrema sont dans l'espace des $\boldsymbol{k}$ des minima ou des cols. Chacune des deux surfaces $e(\boldsymbol{k})$ possède six minima ; les minima de la surface inférieure sont les points e_1 ou les points e'_1, les minima de la surface supérieure sont les points e_2 ou e'_2.

En fait dans le sulfure de cadmium l'énergie cinétique associée à l'exciton, est égale à l'énergie cinétique associée à la transition d'un électron qui passe verticalement de la branche j de la bande de valence à la branche l de la bande de conduction Il y a deux configurations possibles pour chaque surface l'une correspondant au type I lorsque l'un des minima se trouve sur l'axe Ok_x, l'autre correspondant au type II lorque l'un des minima se trouve sur l'axe Ok_y (*fig.* 3).

Les représentations irréductibles associées aux états excités (e) pour lesquels un électron de vecteur d'onde $\boldsymbol{k}$ est passé de la bande de valence à la bande de conduction s'obtiennent facilement si l'on remarque que lorsqu'on s'éloigne du centre de la zone de Brillouin, les représentations Γ_7 et Γ_9 se décomposent de la même façon.

Suivant Ok_x

$$\left.\begin{matrix}\Gamma_7\\ \Gamma_9\end{matrix}\right| \rightarrow \Sigma_3 + \Sigma_4.$$

Suivant Ok_y

$$\left.\begin{matrix}\Gamma_7\\ \Gamma_9\end{matrix}\right| T_3(\boldsymbol{k}) + T_4(\boldsymbol{k}).$$

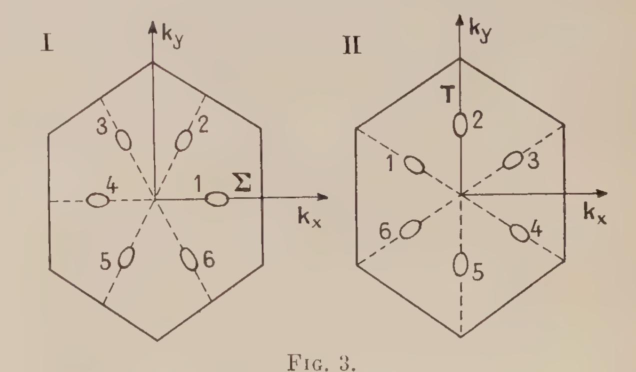


Fig. 3.

Les résultats seront identiques quelle que soit la bande de valence considérée, les représentations associées aux états (e) sont les suivantes [10] :

Dans la direction Ok_x

$$e_1 \left| \begin{array}{l} \Sigma_3 \times \Sigma_3 \\ \Sigma_4 \times \Sigma_4 \end{array} \right. > \rightarrow \Sigma_1$$

$$e_2 \left| \begin{array}{l} \Sigma_3 \times \Sigma_4 \\ \Sigma_4 \times \Sigma_4 \end{array} \right. > \rightarrow \Sigma_2$$

Dans la direction Ok_y

$$e'_1 \left| \begin{array}{l} T_3(k) \times T_3(k) \\ T_4(k) \times T_4(-k) \end{array} \right. > \rightarrow T_1(0)$$

$$e'_2 \left| \begin{array}{l} T_3(k) \times T_4(-k) \\ T_4(k) \times T_3(-k) \end{array} \right. > \rightarrow T_2(0).$$

Si l'énergie cinétique moyenne des excitons est petite par rapport aux séparations entre les diverses courbes, il peut être intéressant de considérer la fonction d'onde globale Φ d'un exciton comme la somme des 6 contributions associées à l'un des groupes de six minima dégénérés. Nous supposerons que les fonctions d'onde spatiales associées à ces excitons sont des scalaires (représentations Σ_1 ou T_1), c'est-à-dire localement des fonctions $1s$.

Les fonctions d'excitons φ associées à chaque minima ont donc même représentation que les états excités (e) d'énergie e_1, e_2, e'_1, e'_2 qui leur correspondent.

Pour le groupe I, la fonction φ associée au site j de représentation Σ_n sera désignée par la notation φ_{j,Σ_n}. Pour le groupe II, la fonction φ associée au site j de représentation T_n sera désignée par la notation φ_{j,T_n}.

On peut toujours choisir les coefficients de normalisation de ces fonctions de façon sûre, puisque C_6 étant l'opérateur de rotation autour de l'axe hexagonal, on aura toujours :

$$C_6\, \varphi_{j,\Sigma_n} = \varphi_{j+1,\Sigma_n} \quad \text{et} \quad C_6\, \varphi_{j,T_n} = \varphi_{j+1,T_n}.$$

Les fonctions globales des excitons Φ sont des combinaisons linéaires des fonctions d'excitons φ et forment des représentations associées au centre Γ de la zone de Brillouin (groupe de l'hexagone plan), nous poserons :

$$\Phi\Sigma_n = \sum_j \alpha_j\, \varphi_{j,\Sigma_n} \qquad \text{I}$$

ou

$$\Phi T_n = \sum_{j'} \alpha_{j'}\, \varphi_{j',T_n}. \qquad \text{II}$$

Les coefficients α sont choisis de façon que les fonctions Φ forment des représentations irréductibles.

TABLEAU II

	Représentations associées aux fonctions			
	e_1 ou e'_1		e_2 ou e'_2	
$(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3, \alpha_4, \alpha_5, \alpha_6)$	I(Σ_1)	ou II(T_1)	I(Σ_2)	ou II(T_2)
$(1, 1, 1, 1, 1, 1)/\sqrt{6}$ →	Γ_1	Γ_1	Γ_2	Γ_2
$(1, -1, 1, -1, 1, -1)/\sqrt{6}$ →	Γ_3	Γ_4	Γ_4	Γ_3
$(l. j, k, l, j, k)/\sqrt{6}$; $(l, k, j, l, k, j)/\sqrt{6}$ →	Γ_6	Γ_6	Γ_6	Γ_6
$(l, -k, j, -l, k, -j)/\sqrt{6}$; $(l, -j, k, -l, j, -k)/\sqrt{6}$ →	Γ_5	Γ_5	Γ_5	Γ_5

j et k sont les racines cubiques de l'unité

$$j = -1/2 + i\sqrt{3}/2$$
$$k = -1/2 - i\sqrt{3}/2.$$

Des excitons sont créés : en lumière // s'ils ont une représentation Γ_1 ; en lumière $\perp$ s'ils ont une représentation Γ_5.

Le tableau II indique que si les vallées de la fonction $e(\boldsymbol{k})$ sont assez profondes, l'état fondamental des excitons associés aux transitions de l'une des trois bandes de valence à la bande de conduction est décomposé en deux groupes de 4 niveaux.

En lumière polarisée parallèlement à l'axe du cristal, un seul niveau Γ_1 est observable par absorption, mais en lumière polarisée perpendiculairement à cet axe deux niveaux Γ_5 doivent être observables.

Les niveaux excités peuvent être traités de manière analogue. Comparons maintenant les tableaux I et II, les représentations indiquées dans le tableau I sont obtenues en supposant implicitement que les extrema des bandes de valence et de conduction sont extrêmement voisins du centre de la zone de Brillouin. Les résultats du tableau II tinnent compte du fait que les extrema peuvent être assez éloignés du centre de la zone de Brillouin. Dans ce dernier cas, la structure des états est plus

complexe. Les états de ces excitons peuvent d'ailleurs être décomposés en une somme d'états « d'excitons purs ». En fait, on pourrait établir une correspondance entre les deux tableaux.

Les classifications des excitons que nous avons données pourraient permettre de calculer les positions et les intensités des pics d'absorption observables.

Dans le CdS, il existe plusieurs séries d'excitons provenant de diverses bandes de valence, mais celles-ci peuvent empiéter les unes sur les autres. En effet, dans le cadre de la théorie simplifiée, on peut considérer trois séries d'excitons purs ou presque purs provenant de trois bandes de valence. Si, par contre, on tient compte de la complexité des bandes, qui se traduit par l'existence d'un ensemble de transitions privilégiées au voisinage du centre de la zone de Brillouin, on doit envisager la possibilité de création par absorption optique de trois séries d'excitons Γ_1 et de 6 séries d'excitons Γ_5, observables respectivement en lumière polarisée parallèlement ou perpendiculairement à l'axe du cristal.

Devant la complexité et le nombre considérable d'états possibles, l'examen des résultats expérimentaux doit être très critique. On peut supposer en premiere approximation que seuls les états de base de l'exciton sont créés par irradiation lumineuse et observable en absorption puisque ce sont les transitions les plus intenses. Dans ce cas, les bandes d'absorption observées peuvent avoir des origines différentes. Il est plausible d'attribuer des séries hydrogénoïdes de raies aux centres d'impuretés peu profonds et ne considérer comme dues aux excitons, que les transitions très intenses, au voisinage de la limite d'absorption.

APPENDICE

1) Toutes les substitutions linéaires associées aux opérations d'un groupe G peuvent être transformées de telle façon que la matrice associée à la substitution soit unitaire [11]. Les substitutions sont alors dites de forme standard.

2) Soit G un groupe irréductible de substitutions linéaires de forme standard agissant sur les variables $x_1 \dots x_n$ et soit A un groupe isomorphe à G agissant sur les variables $y_1 \dots y_r$; le critère pour qu'il existe une forme bilinéaire en x et y, invariante lorsque les x et les y subissent des transformations correspondantes est le suivant : il faut et il suffit que les variables y obéissent aux transformations du groupe $\overline{G}$ conjugué de G. La forme bilinéaire invariante est alors :

$$\sum_{j=1}^{j=m} x_j \, y_j.$$

3) Soit G un groupe irréductible de substitutions linéaires agissant sur les variables $x_1 \dots x_n$. La norme N du vecteur de composantes x_j peut se définir ainsi :

$N = \sum_{j=1}^{j=n} x_j^+ \, x_j$ elle est invariante pour toutes les transformations du groupe.

Un vecteur est dit normé si sa norme est égale à l'unité.

4) Soit un vecteur Z de composante Z_α appartenant à la représentation Γ_a et obtenu en composant les vecteurs x et y de composantes x_β et y_γ associées aux représentations Γ_b et Γ_c nous le représenterons ainsi :

$$Z = \sum_{\beta\gamma} c(a\alpha | b\beta | c\gamma) \, x_\beta \, y_\gamma$$

$$\Gamma_a \in \Gamma_b \times \Gamma_b.$$

Les coefficients $c\,(a\alpha | b\beta | c\gamma)$ seront choisis de telle façon que si les vecteurs x et y sont normés, le vecteur Z soit lui aussi normé.

REMERCIEMENTS

Ce travail a été possible, pour une part, grâce à l'aide du Laboratoire de Recherches Aéronautiques Wright-Patterson Air Force Base, Ohio, par l'intermédiaire de European Office, Air Research and Development Command, auquel nous exprimons notre reconnaissance.

Manuscrit reçu le 19 septembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] GROSS (E. F.), *Nuovo Cimento*, Supplemento Vol. III, série X, 1956, n° **4**, 672. NIKITINE (S.), *J. Phys. Chem. Solids*, 1959, **8**, 190-195.

[2] GROSS (E. F.) et JAKOBSON (M. A.), *Dokl. Akad. Nauk*, U. R. S. S., 1955, **102**, 485.

[3] THOMAS (D. G.) et HOPFIELD (J. J.), *Phys. Rev.*, 1959, **116**, 573-583.

[4] BALKANSI (M.) et DES CLOIZEAUX (J.) *J. Physique Rad.* 1960, **21**. 800.

[5] ELLIOTT (K. J.), *Phys. Rev.*, 1957, **108**, 1384.

[6] A ce sujet voir l'article de HORIE (C.), *Progr. Theor. Phys.*, 1959, **21**, 113.

[7] La démonstration de cette propriété se trouve dans le livre de P. A. M. DIRAC, « The principles of quantum mechanics », 3e édition p. 229 et 252. Oxford Clarendon Press.

[8] ELLIOTT (K. J.), *Phys. Rev.*, 1957, **108**, 1384.

[9] WHEELER (R. G.), *Phys. Rev.*, Letters, 1959, **2**, 463.

[11] QUELLE (F. N.), M. I. T. Quaterly Progress Reports, July 1958.

[12] BURNSIDE (W.), Theory of groups of finite order 2e edition, Dover Publications Inc. Théorème III, p. 257.

EXPOSÉ ET MISE AU POINT BIBLIOGRAPHIQUE

DÉTECTION ET DOSAGE DE LA RADIOACTIVITÉ NATURELLE DE L'ATMOSPHÈRE

Par Daniel BLANC, Jacques FONTAN, René SOULHIER et Gilbert VEDRENNE,
Centre de Physique Nucléaire, Faculté des Sciences de Toulouse.

Résumé. — Après avoir rappelé quelle est la nature de la radioactivité naturelle de l'atmosphère, on passe en revue les divers procédés de détection et de dosage de cette radioactivité : les méthodes directes (chambre d'ionisation, compteur proportionnel, scintillateur) et les méthodes indirectes (précipitation thermique, précipitation par centrifugation, précipitation électrostatique, filtration).
Compte tenu de la diffusion de l'émanation et des conditions météorologiques qui modifient la radioactivité naturelle de l'air, on donne enfin l'ordre de grandeur de cette radioactivité.

Abstract. — After recalling the nature of natural atmospheric radioactivity, we survey the various methods of detection and dosimetry of this radioactivity : direct methods (ionization chamber proportional counter, scintillator) and indirect methods (thermal, centrifugal and electrostatic precipitations, filtration).
Finally, taking into account the diffusion of the emanation and the meteorological conditions that modify the natural radioactivity of air, we give the order of magnitude of this radioactivity.

Origine et nature de la radioactivité naturelle de l'atmosphère. — En 1901, Elster et Geitel [El-1] ont mis en évidence l'existence d'une radioactivité de l'air atmosphérique. On reconnut assez rapidement qu'elle a pour origine deux gaz, le radon ($^{222}_{86}$Em) et le thoron ($^{220}_{86}$Em), qui sont deux isotopes de l'élément 86, appelé « Émanation ». Le premier appartient à la famille radioactive naturelle (uranium-radium) : il est produit par la désintégration alpha de $^{226}_{88}$Ra. Le second appartient à la famille du thorium : il provient de la désintégration du thorium X ($^{224}_{88}$Ra).

Il existe un troisième isotope gazeux de l'élément 86, l'actinon : il appartient à la famille de l'actinium et résulte de la désintégration de l'actinium X ($^{223}_{88}$Ra) ; sa période est très brève (3,92 secondes) et l'atmosphère ne contient que de très faibles quantités de ce gaz ; la radioactivité correspondante est négligeable.

Le radon et le thoron se forment à l'intérieur du sol, à partir de l'uranium et du thorium qui s'y trouvent en faibles concentrations ; ils diffusent ensuite vers la surface et se dégagent dans l'atmosphère. Les matériaux de construction habituels (briques, pierres, béton, etc...) contiennent des traces d'uranium et de thorium : du radon et du thoron se dégagent à l'intérieur des bâtiments. Bien plus, selon Anderson et ses collaborateurs [An-1], [An-2], [An-3], une partie du radon présent dans l'atmosphère des régions industrielles proviendrait de la combustion du charbon.

Dans l'atmosphère, le radon et le thoron se désintègrent à leur tour pour donner deux chaînes de descendants radioactifs (*fig.* 1 et 2). Tous ces descendants sont solides ; lors de leur formation, ils possèdent une grande mobilité et se fixent rapidement sur les aérosols et les poussières en suspension dans l'air, comme l'ont montré Labeyrie [La-2], ainsi que Carmichael et Tunnicliffe [Ca-2]. Voir aussi : [Bu-1], [Po-1].

Ces aérosols, de très faibles dimensions, peuvent rester longtemps présents dans l'atmosphère, en l'absence d'une cause extérieure entraînant leur précipitation au sol, et la radioactivité des descendants s'ajoute à la radioactivité du radon et du thoron ; le calcul de l'ensemble est assez complexe [Co-4], [Ha-1], [He-1], [So-1].

On a mesuré l'activité de tous les descendants du thoron. Pour le radon, celles de RaA, RaB, RaC et RaC' ont été déterminées (*fig.* 1). La période du descendant suivant, le RaD, est beaucoup plus longue (22 ans) : les aérosols sur lesquels il se fixe sont entraînés vers le sol, par leur poids ou par les précipitations, avant qu'un équilibre ait pu être atteint ; d'après Blifford et ses collaborateurs [Bl-3], la période de séjour des aérosols dans l'atmosphère serait en effet voisine de 10 jours. Il en résulte que la radioactivité due aux descendants à vie longue (RaD, RaE, RaF) est très faible [Ki-1].

Procédés de détection. — Choix de la méthode. — Selon la valeur de la concentration des aérosols ou des gaz radioactifs dans l'air, les méthodes utilisées sont très différentes.

1° Si l'activité est supérieure à 10^{-9} curie par litre (plus de 2 220 désintégrations par litre et par minute) on peut plonger directement dans l'air un détecteur, compteur de Geiger-Müller ou scintillateur, par exemple [Ak-1]. De tels niveaux d'activité sont supérieurs à 10 fois l'activité tolérable sans danger, d'après

les normes de l'EURATOM. Ils ne peuvent être atteints qu'à l'intérieur des mines d'uranium.

2° Si l'activité est de l'ordre de 10^{-12} curie par litre (environ deux désintégrations par minute et par litre), on peut enfermer une certaine quantité du gaz étudié dans un détecteur convenablement choisi. Il s'agit d'une méthode directe de mesure, analogue à celle employée dans l'étude des radioéléments gazeux

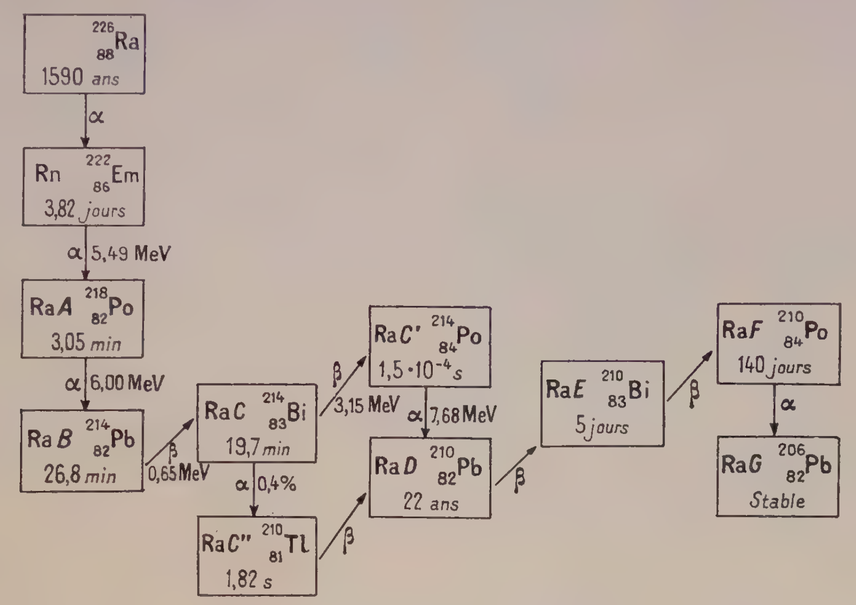


FIG. 1. — Chaîne de désintégration des descendants du radium.

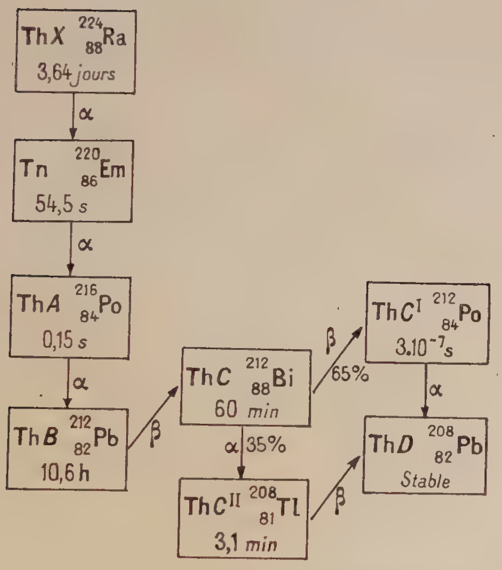


FIG. 2. — Chaîne de désintégration des descendants du thorium *X*.

comme le tritium ($^3_1$H)][Bl-1], [Sh-1] ou $^{14}_6$C sous la forme d'anhydride carbonique [St-3].

3° Pour des concentrations nettement plus faibles (10^{-15} curie par litre, ou moins) la méthode précédente ne peut plus s'appliquer. On peut concentrer le gaz radioactif avant de l'envoyer dans le détecteur où opérer de façon indirecte en rassemblant sur un collecteur les aérosols présents dans l'atmosphère ; l'activité recueillie est ensuite analysée.

MÉTHODES DIRECTES. — L'air est envoyé à l'intérieur d'un détecteur (chambre d'ionisation, compteur proportionnel, scintillateur spécial).

1° *Chambres d'ionisation.* — Les électroscopes utilisés par les premiers expérimentateurs tels que Ashman [As-1] et Eve [Ev-3] rentrent dans cette catégorie. Après concentration sur du charbon actif, très poreux, ou condensation à la température de l'air liquide, l'émanation était envoyée à l'intérieur de l'électroscope ; l'ionisation produite par les particules alpha avait pour effet de décharger l'électrode centrale. De la vitesse de ce phénomène, on déduisait la quantité d'émanation introduite ; l'appareil était préalablement étalonné à l'aide d'une source de radium, émettant par unité de temps une quantité connue de radon.

La méthode fut progressivement perfectionnée : le gaz à analyser était envoyé dans une chambre d'ionisation dont l'électrode centrale était reliée à un électroscope ou à un électromètre [La-4], [Sa-1]. De nombreux montages utilisant des chambres d'ionisation sont encore employés : ils diffèrent en général par la façon dont on mesure le courant d'ionisation : on utilise des tubes électromètres [Fi-1], des amplificateurs de courant continu [De-3], à condensateur vibrant [Ba-2], [Hu-3], ou même des électromètres classiques [An-2], [Ja-2], [He-5].

On peut aussi faire fonctionner la chambre en impulsions et détecter le passage de chaque particule [Ca-2], [Cu-3] ; la hauteur d'impulsion étant proportionnelle à l'énergie perdue par la particule dans le gaz du compteur, on peut séparer les différents émetteurs alpha en associant la chambre d'ionisation à un sélecteur d'amplitudes [Fa-2], [Fa-3], [Hu-1].

Dans le cas d'activités très faibles, on peut utiliser un montage différentiel à deux chambres d'ionisation, dont la sensibilité est plus grande : l'une d'entre elles, fermée, enregistre l'ionisation due aux rayonnements parasites (rayons cosmiques, etc...) ; le courant qu'elle délivre est automatiquement soustrait de celui de l'autre chambre, dans laquelle on envoie le gaz à étudier [Ev-1], [Ja-1], [Wi-2]. Un tel montage peut fonctionner de façon continue. On trouvera sur la figure 3 l'ensemble réalisé par Labeyrie et Weill [La-3].

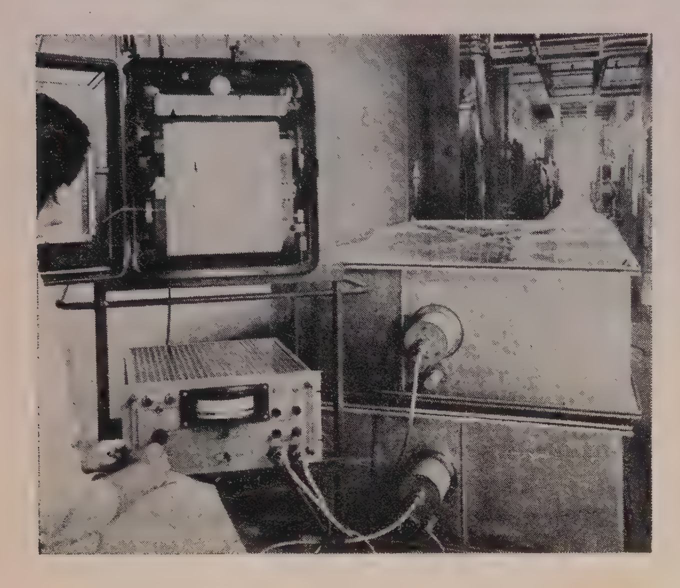


Fig. 3. — Chambre d'ionisation différentielle à fonctionnement continu. D'après [La-3].

Les chambres d'ionisation et les électromètres continuent à être employés pour la mesure du radon et du thoron qui se dégagent des eaux thermales [Du-1], [Ku-2], [Tr-1].

2° *Compteurs proportionnels.* — Ils sont souvent utilisés pour mesurer la quantité de radon et de thoron qui se dégage des roches, des liquides, etc... [Be-2], [Br-2], [Si-2]. Le gaz est envoyé à l'intérieur d'un compteur proportionnel fonctionnant de manière classique [Bl-1]. Malgré sa grande sensibilité, la méthode ne s'applique pas à la radioactivité de l'air lui-même : l'oxygène et l'anhydride carbonique qu'il contient sont les sources d'un grand nombre d'ions négatifs qui produisent des impulsions parasites. Nous citons cette méthode pour mémoire.

3° *Scintillateurs.* — Cette méthode, plus récente, a trouvé de nombreuses applications. Le gaz est envoyé dans une chambre dont les parois internes sont recouvertes d'un scintillateur pour rayons alpha, en général une poudre polycristalline de sulfure de zinc activé à l'argent [An-4]. Une fenêtre, ménagée dans la paroi, est occupée par la photocathode d'un photomultiplicateur qui permet le comptage des scintillations. Ces scintillations sont produites par les particules alpha du radon, lorsqu'elles heurtent la paroi, et aux descendants du radon émetteurs alpha (RaA et RaC'), qui se fixent très rapidement sur les parois de la chambre, comme l'a montré Labeyrie [La-2]. La détection du thoron, moins abondant, est plus délicate.

Les chambres sont souvent des ballons de verre ou de pyrex. Il semble toutefois que le bruit de fond du détecteur soit très diminué lorsque l'on utilise des parois de Kovar ou d'acier inoxydable [Lu-1]. Le volume de l'appareil est en général de quelques centaines de cm^3, [Ku-3], [Va-1] : on ne peut alors mesurer, avec une bonne précision, que des concentrations de radon supérieures à 10^{-13} curie par litre, telles que celles employées dans certaines études de biologie [Da-2], [Ma-4], [Ma-5], [Va-1].

Pour mesurer la concentration du radon dans l'air, le service d'Électronique Physique du Commissariat à l'Énergie Atomique a mis au point un ballon de verre à fond plat, d'un volume de 1 litre, dont la paroi interne est recouverte de sulfure de zinc activé à l'argent : un tel volume permet de mesurer les concentrations de radon habituellement rencontrées dans l'atmosphère. Un ballon scintillateur analogue, d'un volume de 500 cm^3, a été utilisé par Pradel et Billard [Pr-1] pour le dosage du thoron au voisinage des mines de thorium ; on mesure ainsi les concentrations en thoron supérieures à 5.10^{-13} curie par litre.

Méthodes indirectes. — Le principe reste toujours le même : on rassemble sur un collecteur convenable les produits de désintégration du radon et du thoron en suspension dans l'air. Ces produits sont, le plus souvent, portés par des aérosols et les procédés industriels de dépoussiérage s'appliquent : précipitation thermique, précipitation par centrifugation, précipitation électrostatique, filtration. Nous examinerons successivement ces divers procédés.

1° *Précipitation thermique.* — Le principe de cette méthode est voisin de celui de la séparation isotopique : l'air chargé de poussières passe lentement entre deux parois, entre lesquelles existe un certain gradient de température. Les molécules situées au voisinage de la paroi chaude ont une énergie cinétique moyenne plus grande que l'énergie cinétique de celles situées au

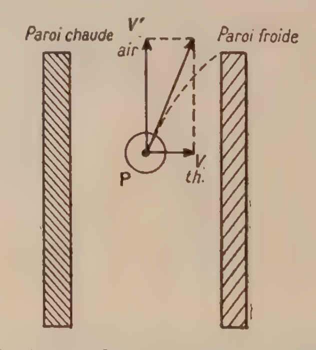


Fig. 4. — Principe de la précipitation thermique. La particule P est déviée vers la paroi froide. D'après [De-2].

voisinage de la paroi froide. Finalement, les poussières et aérosols P transportés par l'air recevront davantage de chocs du côté chaud que du côté froid : ils auront tendance à se coller sur la paroi froide (*fig.* 4), [Br-1], [Wa-1], [Wi-6]. Ce procédé présente l'avantage de collecter les plus petites particules : un tel appareil

aurait une efficacité très voisine de 100 % pour des perticules de diamètres inférieurs à un micron [Pa-1]. Malheureusement, le débit ne peut guère dépasser 10 cm³ par minute, ce qui limite considérablement son emploi.

2° *Précipitation par centrifugation.* — L'air est aspiré à travers une série d'ouvertures en face desquelles sont placées des plaques qui dévient brutalement les filets d'air. Cette déviation projette les poussières sur la plaque où elles sont recueillies par un enduit adhésif (colle, graisse de silicones, etc...) [Gr-1], [Ma-7], ou par un liquide mouillant [Da-3], [Fr-1]. A l'inverse de la précédente, cette méthode possède un rendement beaucoup plus grand pour les grosses particules que pour les petites. On peut l'associer à un autre procédé (filtration, précipitation électrostatique) pour pallier cet inconvénient. En faisant suivre d'une rondelle de papier filtre quatre jets successifs, Laskin [La-5], [St-2] est parvenu à obtenir un rendement variable mais parfois voisin de 100 %, pour des aérosols de 0,2 micron à 50 microns de diamètre.

3° *Précipitation électrostatique.* — Nous avons groupé dans ce paragraphe les appareils qui utilisent la charge des particules pour les envoyer sur un collecteur grâce à un champ électrique. Selon l'origine de cette charge, il faut cependant distinguer deux catégories : à la première appartiennent les appareils dans lesquels les particules se chargent en passant dans un champ électrique intense ; dans la seconde sont rangés les appareils qui utilisent la propriété d'ionisation des atomes venant de subir une désintégration alpha.

Première catégorie. — L'industrie emploie un certain nombre de procédés de dépoussiérage électrique dont le principe est le suivant : l'air à dépoussiérer est envoyé dans une région où règne un champ électrique intense, créé par une forte différence de potentiel (10 000 à 100 000 volts) établie entre un fil [Ha-5] ou une série de fils et un système d'électrodes. Au voisinage du fil, l'air est ionisé par effet couronne : les ions ainsi créés ionisent à leur tour les particules en suspension dans l'air ; ces particules sont entraînées sur l'électrode collectrice. Dans tous ces appareils, on place l'électrode collectrice à la haute tension positive : ainsi, le courant de décharge est légèrement plus élevé et la tension d'amorçage entre les électrodes sensiblement augmentée [De-1].

Le mécanisme de l'ionisation des particules a fait l'objet de plusieurs théories. On pourra se reporter aux travaux de Pauthenier et de ses collaborateurs [Ch-3], [Pa-2], [Pa-3], de Loeb [Lo-2], de Lowe et Lucas [Lo-3], etc...

L'application de la précipitation électrostatique à la mesure de la radioactivité de l'air fut suggérée en 1902 par Sella, mais c'est Mlle Aliverti qui, en 1931, construisit et mit au point le premier appareil fonctionnant sur ce principe [Al-2], [Al-3] ; l'effluve n'est plus créée par le gradient du champ au voisinage de l'électrode centrale, mais par une série de pointes dirigées vers l'électrode collectrice. Cette méthode fut reprise par de nombreux expérimentateurs [Ca-2], [Ma-1]. Wilkening [Wi-2] a utilisé ce procédé pour mesurer les dimensions des aérosols radioactifs de l'air.

Deux électrodes courbes et coaxiales présentent l'inconvénient de collecter les poussières sur une grande surface, et l'analyse radioactive devient plus difficile. On préfère souvent utiliser l'effluve produite entre une série de pointes et un plan pour que les poussières se rassemblent sur ce plan [Ch-2], [Pi-1]. Les différences de potentiel sont inférieures à 10 000 volts, la distance entre les pointes et la plaque étant de quelques millimètres. En remplaçant cette plaque par une bande d'aluminium en déroulement continu, on peut réaliser un enregistrement continu des variations de la radioactivité de l'air en un point donné [Be-4], [Be-5], [Ka-1] [Kn-1], [Wi-3] ; l'efficacité est en général excellente et voisine de 100 %. Bergstedt [Be-5] juge cependant que cette estimation est trop optimiste.

Seconde catégorie. — Un atome qui vient d'émettre une particule alpha se transforme en ion positif ; le passage de la particule alpha dans le cortège électronique de l'atome modifie en effet profondément le champ électrique qui y règne et provoque le départ de plusieurs électrons. Les ions ainsi créés se déplacent dans l'atmosphère sous l'effet du champ électrique. On pourra les recueillir sur un fil ou une plaque chargés négativement. Cette méthode dite « d'activation » ou « de l'activité induite » a été souvent employée pour mesurer la radioactivité atmosphérique, dès les premières recherches [As-1], [El-1], [Ja-2], et, plus récemment, par Evans et Godeman [Ev-2], Wilkening [Wi-4], Skorka [Sk-1]. Vohra l'a utilisée pour mesurer la teneur de l'air en dérivés du thorium, et procéder à des repérages de gisements à distance [Vo-1] ou à des mesures de contaminations atmosphériques [Vo-2]. D'autres auteurs ont employé ce procédé pour mesurer les concentrations de radon et de thoron au voisinage de sources thermales [Le-3], [Le-4], [Pr-3].

La méthode d'activation présente un inconvénient : les ions positifs créés dans l'atmosphère par désintégrations alpha se fixent sur les aérosols de l'air, ce qui diminue leur mobilité ; ils peuvent aussi rencontrer des ions négatifs, également présents dans l'atmosphère, avec lesquels il se recombinent. Le nombre des particules chargées collectées sera donc diminué du nombre des particules recombinées ; il faut tenir compte de cette recombinaison pour évaluer l'activité présente dans l'air. Certains des auteurs cités plus haut ont commis l'erreur de ne pas effectuer cette correction.

4° *Filtration.* — On débarrasse l'air de ses poussières en le faisant passer à travers une surface filtrante. Les méthodes de filtration sont appliquées industriellement, par exemple pour assurer la décontamination de l'air ayant séjourné dans les laboratoires de radiochimie traitant des produits très actifs. Les caractéristiques de plusieurs modèles de filtres commerciaux ont fait l'objet d'études [Be-1], [Co-1], [Fi-2], [Ja-1].

Le principe de la méthode est simple : l'air à dépoussiérer est aspiré à travers un filtre qui peut être constitué par un bourrage ou un feutrage de fibres de cellulose [St-4], de laine de verre, d'amiante, de matières végétales ou de matière plastique. Le diamètre moyen de chaque fibre va de quelques microns à quelques dizaines de microns.

La filtration des poussières provient : 1) d'un *effet de tamisage* en ce qui concerne les grosses particules ou les agglomérats de particules ; 2) d'un *effet d'inertie*, par déviation des filets d'air au passage sur les fibres ;

3) d'un *effet de diffusion* pour les particules les plus fines : les particules de diamètre inférieur à quelques dixièmes de micron, entraînées par le courant d'air, oscillent par agitation thermique autour d'une ligne moyenne ; l'amplitude des oscillations augmente quand les dimensions des aérosols diminuent. La probabilité de rencontre d'une particule avec une fibre, par effet

Fig. 5. — EAR-600 vu de face. D'après [La-3].

A : Enregistreur MECI. — B : Panneau général de commande. — C : Panneau intégrateur. — D : Alimentation stabilisée des circuits électroniques (ALS). — E : Panneau libre. — F : Prise de masse. — G : Compteur horaire.

de diffusion, augmente donc de la même manière ; 4) pour certains filtres, s'ajoute un *effet électrostatique*, les fibres ayant gardé une charge électrique lors de leur compression.

Dans le cas de la radioactivité atmosphérique, les filtres sont d'un type plus particulier : il s'agit, en général, de papiers filtres de quelques dixièmes de millimètre d'épaisseur. Il faut cependant citer une intéressante réalisation du Commissariat à l'Énergie Atomique : il s'agit d'un appareil portatif où l'air est filtré sur du charbon de bois qui retient également le radon [Ca-1]. Le comptage est assuré par un compteur de Geiger-Müller placé au centre de la cartouche de charbon.

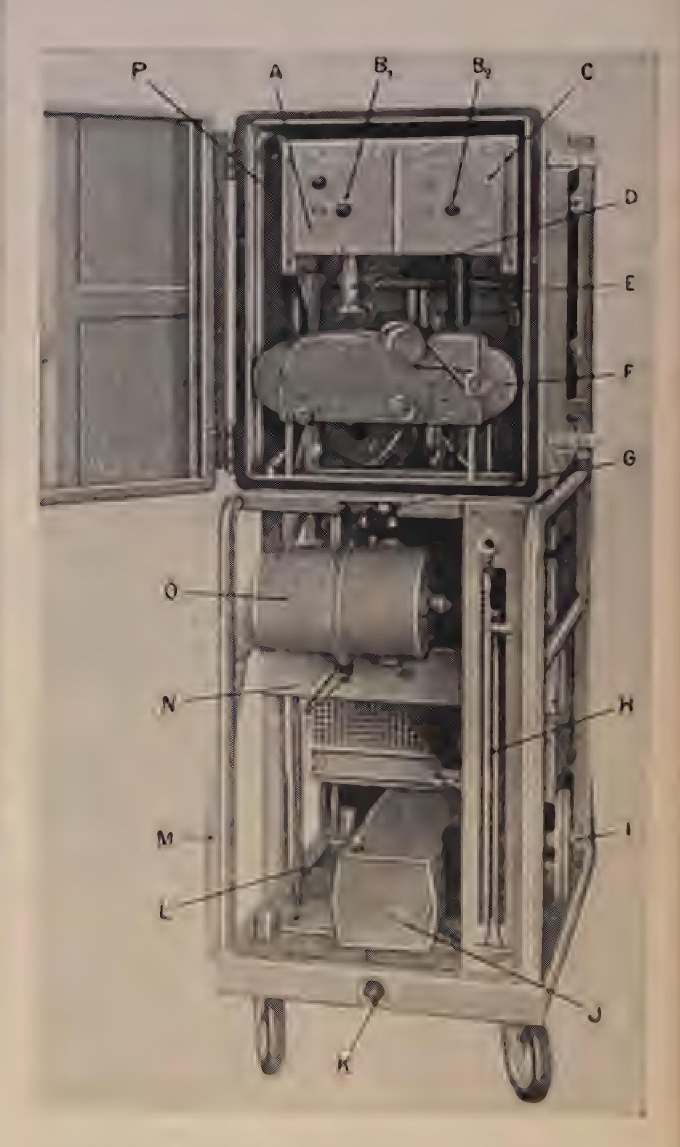


Fig. 6. — Vue arrière de l'EAR-600. D'après [La-3].

A : Préampli GM (P_1). — C : Préampli. — D : Détecteur GM. — E : Détecteur PM. — F : Dérouleur. — G : Interrupteur de l'éclairage du coffre. — H : Manomètre à liquides. — I : Détendeur (caché en partie). J : régulateur de tension. — K : Prise secteur. — L : Commutateur 110-220 V. — M : Trompe d'aspiration. — N : Barrette de distribution. — O : Aspirateur. — P. Coffre de prélèvement (ouvert).

Selon l'installation, le filtre peut être fixe [Ba-1], [Bo-1], [Da-1], [Ha-2], [Ha-3], [Ha-4], [Sc-2], ou mobile. Dans ce dernier cas, on obtient un enregistrement continu des variations de la radioactivité atmosphérique ; les appareils E. A. R. construits par le Commissariat à l'Énergie Atomique [Je-2], [La-1], [La-3], ainsi que de nombreux appareils étrangers [An-5], [Bo-1], [De-4], [Ku-1], [Ma-6], [Sa-4], [Sp-1], [Wa-2] rentrent dans cette catégorie. On trouvera sur les figures 5 et 6 l'EAR-600 du Commissariat à l'Énergie Atomique.

La plupart des filtres ont une efficacité qui varie de 90 % à 100 % pour les poussières industrielles de diamètre supérieur à un micron. Cette efficacité n'est plus que de 30 à 40 % pour des aérosols de dimensions voisines de 0,1 micron ; elle atteint à nouveau 90 % pour des gros ions de dimensions voisines de 0,001 micron [Ja-1].

Nous pouvons classer dans cette catégorie notre appareil de dosage continu des gaz radioactifs [Bl-2] : dans les méthodes qui précèdent, on suppose implicitement que l'équilibre radioactif est atteint entre le radon et ses descendants, mais ce n'est pas toujours le cas, particulièrement en atmosphère agitée. Labeyrie et Weill [La-3] ont abordé ce problème en utilisant une chambre d'ionisation différentielle et en l'alimentant à travers un filtre (*fig.* 3). Dans notre appareil (*fig.* 7),

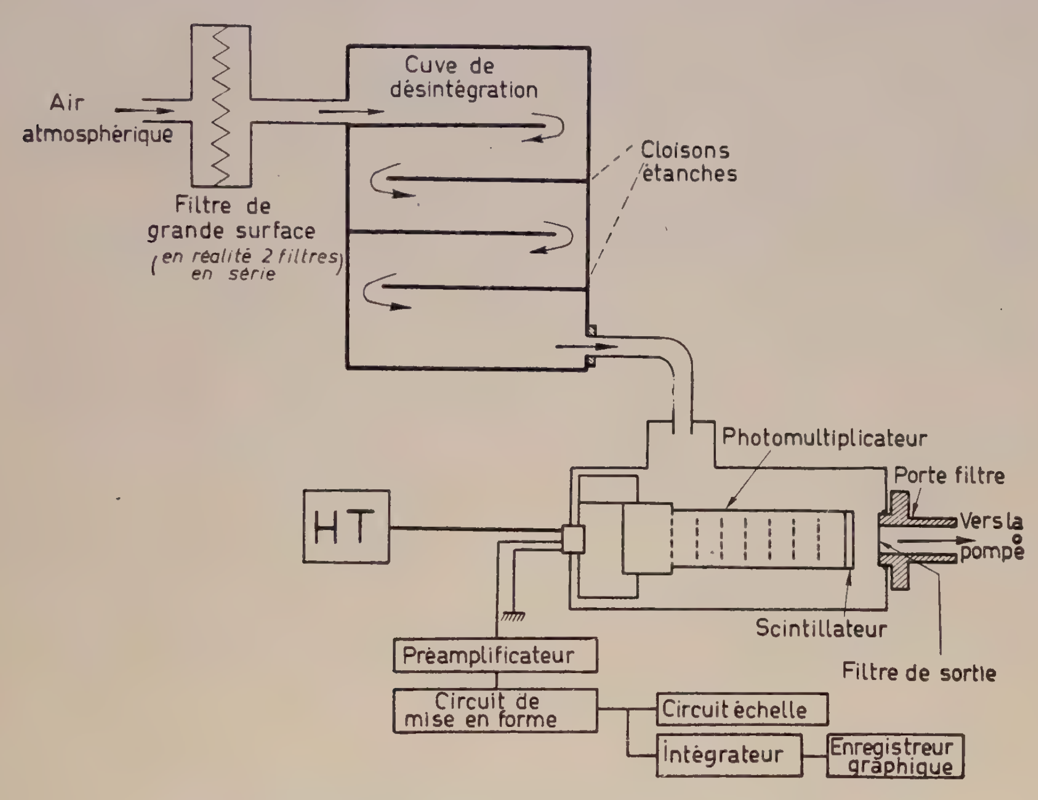


Fig. 7. — Ensemble de dosage continu du radon dans l'atmosphère [Bl-2].

l'air, préalablement filtré, est envoyé de façon continue dans une chambre de désintégration (1 000 litres). Les produits de désintégration du radon formés dans cette chambre sont recueillis sur un filtre et analysés. L'activité minimale détectable est de $1{,}4.10^{-14}$ curie de radon par litre d'air.

5° *Mesure de l'activité des prélèvements.* — Les aérosols radioactifs sont toujours recueillis sur un support et la moitié du rayonnement émis est dirigée vers l'intérieur du collecteur ; elle ne pourra pas être comptée, sauf si le support est un papier filtre de faible épaisseur et si l'on opère par comptage bêta.

La mesure de l'activité recueillie sur le collecteur peut se faire par comptage α ou par comptages β et γ. Les aérosols radioactifs naturels sont émetteurs α, β et γ, alors que les aérosols radioactifs artificiels (produits de fission, surtout) sont émetteurs β et γ ; un comptage α permet de séparer les éléments naturels des éléments artificiels. Remarquons que, lorsque l'on mesure la radioactivité totale de l'atmosphère par comptage β, on peut séparer facilement les éléments naturels des éléments artificiels en étudiant la loi de variation des courbes de décroissance.

Le premier appareil de mesure utilisé fut l'électroscope. Il fut remplacé ensuite par la chambre d'ionisation, dans laquelle sont placés les fils ou les plaques chargés d'aérosols [Sa-1]. Cette méthode continue à être employée dans le cas de la précipitation électrostatique [Al-2], [Al-3] et dans celui de la filtration [Cr-1], [Fa-1], [Ma-3], [Sm-1].

Si la chambre fonctionne en impulsions, l'emploi de chambres spécialement étudiées permet de tracer le spectre des éléments recueillis par précipitation électrostatique ; c'est ainsi qu'ont opéré Facchini et Malvicini [Fa-1], [Fa-2].

Quelques auteurs ont utilisé des compteurs proportionnels à l'intérieur desquels ils plaçaient l'électrode collectrice d'un précipitateur [Ca-2], [Wi-2]. Ce procédé est assez difficile, car le remplissage du compteur doit être renouvelé à chaque opération.

Le compteur de Geiger-Müller est le détecteur le plus employé dans les mesures β ou γ sur un collecteur. La mesure de l'activité recueillie sur un filtre peut se faire simultanément à l'aide de deux compteurs de Geiger-Müller placés de part et d'autre du filtre [Ph-1]. Quivy [Qu-1] a calculé quelle est, entre les deux compteurs, la différence du taux de comptage due à l'absorption des rayons β à l'intérieur du filtre.

Les appareils employant des scintillateurs sont aussi très nombreux. Certains auteurs utilisent simultanément un compteur à scintillations, pour la mesure des rayons α, et un compteur de Geiger-Müller, pour la mesure des rayons β, ces deux détecteurs étant placés de part et d'autre du filtre [Wa-2]. On peut employer, de même, deux compteurs à scintillations, l'un des scintillateurs étant une poudre de ZnS(Ag), l'autre un scintillateur plastique pour rayons β.

Il est assez courant de placer les plaques ou le filtre à analyser au contact d'une émulsion nucléaire [Al-4], [Al-5], [Ch-1], [Fa-4], [La-2], [Le-1], [Ma-3], [Mo-1], [Mo-2], [Si-1]. On peut même recueillir directement sur la plaque photographique les aérosols, par précipitation [Er-1], [Je-1]. L'examen au microscope des traces obtenues dans les plaques développées donne des renseignements sur le nombre et sur la nature des particules recueillies sur le collecteur.

On peut enfin faire appel à l'analyse chimique des poussières recueillies [Ki-1], [Al-1]. Avy et Raillère [Av-1], par exemple, emploient pour recueillir les poussières un filtre cristallin soluble.

Causes diverses de variation de la radioactivité naturelle de l'air. — Diffusion de l'émanation. — La radioactivité naturelle de l'atmosphère varie beaucoup d'un lieu à un autre ; en un même lieu, on observe des variations fréquentes et importantes [Bl-4].

Cette radioactivité provient de la diffusion de radon et de thoron à partir du sol : elle est fortement influencée par les conditions météorologiques des couches inférieures de l'atmosphère, et, en particulier, par l'existence de courants de convection au niveau du sol. Elle est liée à un phénomène d'échange dont il est possible de faire une étude quantitative.

La fonction $s(z)$, qui représente la distribution verticale du radon dans l'atmosphère, est la solution d'une équation différentielle de la forme [Co-3], [Is-1] :

$$\frac{A}{\rho}\frac{d^2 s}{dz^2} + \frac{1}{\rho}\frac{dA}{dz}\cdot\frac{ds}{dz} - \lambda s = \frac{dE}{dz}.$$

s = densité de l'émanation (curie cm^{-3}).
E = quantité d'émanation (curie cm^{-2} s^{-1}).
A = coefficient d'échange (g cm^{-1} s^{-1}).
λ = constante radioactive du radon (s^{-1}).
ρ = densité de l'air.

Cette équation reste valable pour le thoron. Elle a été intégrée en supposant $dA/dz = 0$ [He-3], ou en donnant à A des valeurs arbitraires. Les résultats obtenus s'accordent grossièrement avec la valeur expérimentale de E :

$$E = 40.10^{-18} \text{ curie cm}^{-2}\text{ s}^{-1} \qquad \text{(Is-1)}$$

La concentration optimale a été obtenue par Priebsch [Pr-2] ; dans certains cas, les écarts sont importants : à New-York, par exemple, Cullen a trouvé $E = 5.10^{-18}$ curie cm^{-2} sec^{-1} [Cu-1]. Ces écarts semblent dus à la nature des sols.

Influence des conditions météorologiques. — L'équation précédente n'est valable qu'en atmosphère calme (absence de vent, pas d'inversion de température).

L'influence du vent se manifeste de deux manières [Ch-2], [Fu-1], [He-2], [Hu-2] : la vitesse d'émission du radon est augmentée, ce qui entraîne une augmentation de la radioactivité ; d'autre part, le vent, emmenant au loin les particules formées, provoquerait une diminution de leur concentration. Enfin, la direction du vent joue un rôle important [Ch-2], [Co-2], [Je-3], [Je-4], [Re-1], [Sk-1], [St-1], [Ta-1], et l'on a pu ainsi procéder au repérage à distance de gisements de thorium [Vo-1].

Sur la diffusion à partir du sol, l'influence de la température est très faible : il faut que la température s'élève de 120° à 150 °C pour que la quantité de gaz émanant des roches soit doublée [Gi-1]. Par contre, son influence est très importante dans les variations quotidiennes de la radioactivité de l'air. En général, en atmosphère calme, on trouve un minimum d'activité dans l'après-midi ou à la tombée de la nuit, au moment où les courants de convection de l'atmosphère sont favorisés par l'échauffement du sol, et un maximum durant la nuit ou aux premières heures de la matinée, alors que l'air froid demeure au voisinage du sol [Wi-4]. Se basant sur les données de Lettau [Le-5], Cotton [Co-3] a fait le calcul théorique du rapport des activités diurne et nocturne : ce rapport est d'autant plus grand que la radioactivité moyenne est plus faible.

D'autre part, en un lieu donné, la radioactivité est maximale lors des inversions de température, c'est-à-dire quand les basses couches de l'atmosphère se maintiennent constamment au voisinage du sol.

La pluie provoque une décroissance de l'activité naturelle ; elle entraîne vers le sol les aérosols en suspension dans l'air, elle colmate les fissures et les capillaires du sol par lesquels s'échappe l'émanation [Ko-1]. La neige et le gel produisent le même effet. Le brouillard retient au contraire les particules au voisinage du sol, ce qui augmente l'activité de l'air ; les aérosols formés ont aussi des dimensions plus grandes et leur probabilité de capture est augmentée.

La radioactivité dépend de la pression atmosphérique [Sa-2] : le radon se dégage d'autant plus facilement que la pression atmosphérique est plus faible [He-2].

Enfin, on note une variation saisonnière marquée, présentant un maximum annuel, mais la période de l'année à laquelle se manifeste ce maximum est variable d'une région à une autre [Bl-4], [Wi-5].

Il est très difficile d'établir une théorie globale de la variation de la radioactivité naturelle de l'atmosphère, en raison de la complexité des facteurs météorologiques qui interviennent dans les observations.

Ordre de grandeur de la radioactivité naturelle. — Compte tenu des divers facteurs que nous venons de citer, nous pouvons donner la *valeur moyenne* de la

radioactivité atmosphérique. Sur les continents, et au niveau du sol, elle est de l'ordre de 1 à 2.10^{-13} curie par litre d'air pour le radon, et de 2 à 3.10^{-15} curie par litre pour le thoron.

Au-dessus des océans, les valeurs trouvées sont beaucoup plus faibles : 10^{-15} curie par litre pour le radon, $0,1.10^{-15}$ curie par litre pour le thoron [Bl-4], [He-4], [He-5], [Is-1], [Sk-1].

En montagne, on obtient des résultats plus forts, alors qu'à haute altitude, les mesures aériennes faites par Wilkening [Wi-4] et par Garrigue [Ga-1], [Ga-2] montrent que la radioactivité décroît très vite quand l'altitude augmente : au-dessus de 3 000 mètres, on rencontre surtout des ions libres, non recombinés.

La dose de tolérance est plus de dix fois supérieure aux plus fortes concentrations enregistrées. Il n'en est plus de même dans les mines d'uranium où des installations de contrôle fonctionnant en permanence sont indispensables.

Nous remercions, Mlle Huguette Bourdès, Secrétaire du Centre de Physique Nucléaire, pour sa participation au dépouillement de la documentation.

Cette étude a pu être menée à bien grâce à un contrat du Commissariat à l'Énergie Atomique.

Manuscrit reçu le 27 juillet 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[Ak-1] Akpinar (S.), *Istambul Univ. Fak. Mecmuasi*, 1957, **27**, n° 2.
[Al-1] Alercio (J. S.) et Harley (J. H.), *Nucleonics*, 1952, **10**, n° 11, 87.
[Al-2] Aliverti (G.), *Nuovo Cimento*, 1931, **8**, 233.
[Al-3] Aliverti (G.), *Nuovo Cimento*, 1932, **9**, 313.
[Al-4] Aliverti (G.) et coll., *Nuovo Cimento*, 1957, **7**, 270.
[Al-5] Aliverti (G.) et coll., *Nuovo Cimento*, 1958, **1**, 68.
[An-1] Anderson (J. R.), *Brit. Chem. Eng.*, 1956, **12**, 418.
[An-2] Anderson (W.), Mayneor (D. V. D.) et Turner (R. C.), *Nature*, 1954, **174**, 424.
[An-3] Anderson (W.) et Turner (R. C.), *Nature*, 1956, **178**, 203.
[An-4] Anthony (J. P.), Thèse Doctorat ès Sciences, Paris, 1955.
[An-5] Anton (N.), *C. R. Conf. Intern. Appl. Pac. Energie Atomique*, Genève, 1955, vol. **14**, 316.
[As-1] Ashman (G.), *Amer. J. Sc.*, 1908, **26**, 119.
[Au-1] Aurand (K.), *Beit. Phys. Atmosphäre*, 1959, **31**, 244.
[Av-1] Avy et Raillere, *Memorial Serv. Chim. Etat*, 1944, **31**, 74.
[Ba-1] Barreira (F.) et Laranjera (M.), *C. R. Conf. Intern. Appl. Pac. Energie Atomique*, Genève, 1955, vol. **9**, 860.
[Ba-2] Bate (G. L.), Volchok (H. L.) et Kulp (J. L.), *Rev. Sc. Instr.*, 1954, **25**, 153.
[Ba-3] Baus (R. A.), *Journ. Atmosph. Terr. Phys.*, 1956 **89**, 1.
[Be-1] Becker (A.), Le Gallic (Y.) et Thénard (M.), *Bull. Inform. Sc. Techn. C. E. A.*, 1959, n° 33.
[Be-2] Begemann (F.), *Helv. Phys. Acta*, 1954, **27**, 451.
[Be-3] Belwicke (C. C.) et Stout (P. R.), *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 1959, **40**, 285.
[Be-4] Bergsted (B. A.), *C. R. Conf. Intern. Appl. Pac. Energie Atomique*, Genève, 1955, vol. **9**, 868.
[Be-5] Bergsted (B. A.), *J. Sc. Instr.*, 1956, **33**, 142.
[Bl-1] Blanc (D.), Détecteurs de particules, compteurs et scintillateurs, Masson, édit., Paris, 1959.
[Bl-2] Blanc (D.), Fontan (J.) et Vedrenne (G.), *C. R. Acad. Sc.*, 1960, **250**, 3629.
[Bl-3] Blifford (I. H.) et coll., *J. Geophys. Res.*, 1952, **57**, 449.
[Bl-4] Blifford (I. H.), *J. Atmosph. Terr. Phys.*, 1956, **89**, 1.
[Bo-1] Bosch (J.) et Ulsenheimer (G.), *Nukleonik*, 1958, **1**, 157.
[Br-1] Bredl (J.) et Grieve (T. W.), *J. Sc. Instr.*, 1951, **28**, 21.
[Br-2] Brown (S. C.), Elliott (L. G.) et Evans (R. D.), *Rev. Sc. Instr.*, 1942, **13**, 147.
[Bu-1] Burke (T.) et Nolan (J. J.), *Proc. Royal Irish Acad.*, 1950, **53**, sect. A, n° 9.
[Ca-1] Cadudal (C.), *J. Physique Rad.*, 1955, **16**, 479.
[Ca-2] Carmichael (H.) et Tunnicliffe (P. R.), *J. Ind. Hyg. Toxicol.*, 1948, **30**, n° 4, 21.
[Ch-1] Chamie (C.), *J. Chem. Physics*, 1931, **28**, 228.
[Ch-2] Chapman (N. G.) et Humphrey (R. W.), *J. Sc. Technol.*, 1955, **37**, n° 3.
[Ch-3] Challande (R.), *J. Rech. C. N. R. S.*, 1954-1955, **28**, 291.
[Cl-1] Clerc (H.), École Franç. Meunerie, 1953, **135**, 120.
[Co-1] Cochinal (R.), note C. E. A., n° 177, 1956.
[Co-2] Corton (H. C.) et Hales (W. B.), *Proc. Utah Acad. Sc. Arts Let.*, 1953, **30**, 124.
[Co-3] Cotton (E. S.), *J. Atmospher. Terr. Phys.*, 1955, **7**, 90.
[Co-4] Courtier (G. B.), *Nature*, 1957, **180**, 382.
[Cr-1] Crosthwait (L. B.), *J. Sc. Technol.*, 1955, **37**, 382.
[Cu-1] Cullen (T. L.), *An. Acad. Bras. Cianc.*, 1957, **29**, 545.
[Cu-2] Curie (Mme), Radioactivité, Hermann, édit., Paris, 1935.
[Cu-3] Curtis (L. F.) et Davis (F. J.), *Bur. Standards J. Res.*, 1943, **31**, 1.
[Da-1] Daddi (L.), *Ricerca Sci.*, 1957, **3**, 313.
[Da-2] Damon (P. E.) et Hyde (H. T.), *Rev. Sc. Instr.*, 1952, **23**, 766.
[Da-3] Dautrebande (L.), Librairie de l'Association des Industriels de Belgique, 1952.
[De-1] Delassalle (A.), *Rev. Gén. Electr.*, juillet 1939, 851.
[De-2] Delibrias (G.) et Labeyrie (J.), *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 407.
[De-3] Delibrias (G.), *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 78-A.
[De-4] Delwiche (C. C.) et Stout (P. R.), *Bull. Amer. Meteorol. Soc.*, 1959, **40**, n° 6.
[Du-1] Duchon (R.), *J. Physique Rad.*, 1937, **8**, 285.
[El-1] Elster (J.) et Geitel (M.), *Phys. Z.*, 1901, **2**, 560.
[Er-1] Erdik (E.), *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 445.
[Ev-1] Evans (R. D.), *Rev. Sc. Instr.*, 1935, **6**, 99.
[Ev-2] Evans (R. D.) et Godeman (C.), *J. Ind, Hyg. Toxicol.*, 1940, **22**, 89.
[Ev-3] Eve (A. S.), *Phil. Mag.*, 1907, **14**, 724 ; *Phil. Mag.*, 1908, **16**, 622.
[Fa-1] Facchini (V.) et Malvicini (A.), *Nucleonics*, 1955, **13**, n° 4, 36.
[Fa-2] Facchini (V.) et Malvicini (A.), *Nuovo Cimento*, 1955, **2**, 340.
[Fa-3] Facchini (V.) et Malvicini (A.), *C. R. Conf. Intern. Appl. Pac. Energie Atomique*, Genève, 1955, **9**, 865.
[Fa-4] Faraggi (H.), Thèse Doctorat ès Sciences, Paris, 1950.
[Fi-1] Finney (G. D.) et Evans (R. D.), *Phys. Rev.*, 1935, **48**, 503.
[Fi-2] Fitzgerald (J. J.) et Detwiler (G. G.), U.S.A.E.C., rapport KAPL-1088 (15 mars 1954).
[Fl-1] Flanagan (F. J.) et Senftle (F. E.), *Anal. Chem.*, 1954, **26**, n° 10.
[Fr-1] Franeau (J.) et Quivy (R.), Publ. Association des

Ingénieurs de la Faculté Polytechnique de Mons, 1957, 4e fasc.
[Fu-1] Furtado-Alves (M. A.), *Rev. Fac. Ci.*, Lisboa, 1957, **26**, 97.
[Ga-1] Garrigue (H.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1951, **232**, 722.
[Ga-2] Garrigue (H.), *Ind. Atom.*, 1958, **7-8**, 125.
[Gi-1] Giletti (B. J.) et Kulp (J. L.), *Amer. Mineral.*, 1955, **40**, 481.
[Gr-1] Groupe de Rochester, The pharmacology and toxicology of uranium compounds. *Nat. Nucl. Energ.*, Ser. VI, MacGraw-Hill, édit., New-York, 1949.
[Ha-1] Harley (J.), *Thèse*, Rensslaer Polyth. Inst., juin 1952.
[Ha-2] Hasenclever (D.), *Staub*, 1958, **18**, n° 2, 44.
[Ha-3] Hasenclever (D.), *Staub*, 1959, **19**, n° 2, 37.
[Ha-4] Haxel (O.), *Z. Angew. Phys.*, 1953, **5**, 241.
[Ha-5] Hayes (A. D.), *Arch. Ind. Hyg. Occup. Medic.*, 1954, **9**, 69.
[He-1] Healy (J. W.), *Nucleonics*, 1952, **10**, n° 10, 14.
[He-2] Hess (C. F.), *S. B. Acad. Wiss. Wien. Ber.*, 1910, **119**, 145.
[He-3] Hess (V. F.) et Schmidt (W.), *Phys. Z.*, 1918, **19**, 109.
[He-4] Hess (V. F.), *S. B. Akad. Wiss. Wien. Ber.*, 1918, **217**, 1927.
[He-5] Hess (V. F.), *J. Atmosph. terrest. Phys.*, 1953, **3**, n° 3.
[He-6] Hess (V. F.) et Jaki (S. L.), *J. Geoph. Res.*, U. S. A., 1958, **63**, 373.
[Hu-1] Hudgens (J. E.) et coll., *Nucleonics*, 1951, **9**, n° 3, 2.
[Hu-2] Humphrey (R. W.) et Chapmann (N. G.), *J. Sc. Technol.*, 1955, **37**, 396.
[Hu-3] Hurley (P. M.), *Bull. Geol. Soc. Amer.*, 1950, **61**, 1.
[Is-1] Israel (H.), *Amer. Meteorol. Soc., Comp. Meteorol.*, Boston, 1951, 155.
[Ja-1] Jacobi (W.), Schraub (A.), Aurand (K.) et Muth (H.), *Beitr. z. Phys. Atmosphäre*, 1959, **31**, 24[illegible].
[Ja-2] Jaki (S. L.) et Hess (V. F.), *J. Geophys. Res.*, 1958, **63**, 373.
[Je-1] Jech (C.), *Coll. Trav. Chem. Tchecoslov.*, 1951, **15**, 719 ; *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1731.
[Je-2] Jehanno (C.), Blanc (A.), Lallemant (C.) et Roux (G.), *C. R. Conf. Intern. Appl. Pac. Energie Atomique*, Genève, 1958, vol. **23**, 372.
[Je-3] Jehanno (C.) et Labeyrie (J.), *J. Mécan. Phys. Atmosphère*, 1959, **1**, 1.
[Je-4] Jehanno (C.) et Tanaevsky (O.), *J. Mécan. Phys. Atmosphère*, 1959, n° **1**, 5.
[Ka-1] Kawano (M.) et Nakatani (S.), *J. Meteorol. Soc.*, Japan, 1958, **38**, n° 4, 13.
[Ki-1] King (P.), Lockhart (L. B.), Friedman (H.) et Blifford (I. H.), *Nucleonics*, 1956, **14**, n° 6, 78.
[Kn-1] Knowles (D. J.), *Nucleonics*, 1955, **13**, n° 6, 99.
[Ko-1] Kovach (E. M.), *Terr. Magn. Atom. Electr.*, 1946, **51**, 45.
[Ku-1] Kuper (J. B. H.), Foster (E. H.) et Bernstein (W.), *Nucleonics*, 1950, **6**, n° 4, 44.
[Ku-2] Kuroda (K.), *Anal. Chem.*, 1953, **25**, 832.
[Ku-3] Kusnetz (H. L.), *Arch. Industr. Health*, 1957, **15**, 83.
[La-1] Labeyrie (J.) et Pelle (M.), *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 477.
[La-2] Labeyrie (J.), *Thèse* Doctorat ès Sciences, Paris, 1954 ; rapport C. E. A. n° 335.
[La-3] Labeyrie (J.) et Weill (J.), *C. R. Conf. Intern. Appl. Pac. Energie Atomique*, Genève, 1955, vol. **9**, 856.
[La-4] Langevin (P.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1905, **140**, 232.
[La-5] Laskin (S.), Modified cascade impactor, U.S.A.E.C., rapport MDDC-1500, 1946.
[Le-1] Leary (J. A.), *Anal. Chem.*, 1951, **23**, 850.
[Le-2] Lehmann (I.), *Staub*, 1959, **19**, n° 1, 16.
[Le-3] Lepape (A.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1924, **178**, 931.
[Le-4] Lepape (A.) et Geslin (M.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1940, **210**, 223.
[Le-5] Lettau (M.), *Beitr. Geophys.*, 1941, **57**, 365.
[Lo-1] Lockhart (L. B.), *J. Geoph. Res.*, 1959, **64**, 1445.
[Lo-2] Loeb (L. B.), Fundamental processes of electrical discharges in gases. John Wiley and Sons, édit., New-York, 1939.
[Lo-3] Lowe (H. J.) et Lucas (D. H.), *Brit. J. Appl. Physics*, 1953, suppl. **2**, S-40.
[Lu-1] Lucas (H. F.), *Rev. Sc. Instr.*, 1957, **28**, 680.
[Ma-1] Macek (O. I.), *Beitr. Geoph.*, 1935, **43**, 388.
[Ma-2] De Maio (A.), *Geof. e Meteorol.*, 1956, **4**, n° 3, 37.
[Ma-3] De Maio (A.) et Aliverti (G.), *Nuovo Cimento*, 1954, **12**, 270.
[Ma-4] Malvicini (A.), *Nuovo Cimento*, 1954, **12**, 479.
[Ma-5] Malvicini (A.), *Nuovo Cimento*, 1954, **12**, 822.
[Ma-6] Mansfield (T. H.), *Nucleonics*, 1952, **10**, n° 9, 55.
[Ma-7] May (K. R.), *J. Sc. Instr.*, 1945, **22**, 187.
[Mo-1] Moraschinelli (E.), *Nuovo Cimento*, 1953, **10**, 1341.
[Mo-2] Moraschinelli (E.), *Annali Geofis.*, 1953, **6**, 361.
[Pa-1] Patty (F. A.), *Industr. Hygien and Toxicol.*, Interscience Edit., New York, 1948.
[Pa-2] Pauthenier (M.) et Mme Moreau-Hanot, *J. Physique Rad.*, 1932, **3**, 590.
[Pa-3] Pauthenier (M.) et Challande (R.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1953, **236**, 69.
[Ph-1] Philippot (J. C.), *Bull. Inf. Sc. Techn. C. E. A.*, 1958, **19**, 2.
[Pi-1] Pizzo (M.), *Atti Acad. Sc. Ferrara*, 1952-1953 ; *Nuovo Cimento*, 1954, **12**, suppl.
[Po-1] Pollock (J. A., *Phil. Mag.*, 1915, **29**, 636.
[Pr-1] Pradel (J.) et Billard (A.), *C. R. Conf. Intern. Appl. Pac. Energie Atomique*, Genève, 1958, **23**, 313.
[Pr-2] Priebsch (J.), *Physik. Z.*, 1931, **32**, 622.
[Pr-3] Proix-Noe (G.), *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1946, **223**, 548.
[Qu-1] Quivy (R.), *C. R. Conf. Intern. Appl. Pac. Energie Atomique*, Genève, 1958, **23**, 395.
[Re-1] Reiter (R.), *Z. Naturforsch.*, 1956, **11-a**, 411.
[Sa-1] Satterly (J.), *Phil. Mag.*, 1908, **16**, 584.
[Sa-2] Satterly (J.), *Le Radium*, 1912, **9**, 101.
[Sa-3] Savel (P.), *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 113-A.
[Sa-4] Sawle (O. R.), *Nucleonics*, 1956, **14**, n° 8, 90.
[Sc-1] Schonland (B. F. J.), Atmospheric electricity, Methuen and Co, edit., Londres, 1953.
[Sc-2] Schumann (G.), *Arch. Meteor., Geophys. Bioklimatol.*, 1956, **9**, 205.
[Se-1] Sella (A.), *Atti Acad. Lincei*, 1902, **11**, 57 ; *Atti Acad. Lincei*, 1902, **11**, 222.
[Sh-1] Shaw (D. F.), *J. Sc. Instr.*, 1955, **32**, 178.
[Si-1] Şiksna, *Ark. Geof.*, 1950, **1**, 123.
[Si-2] Silker (W. D.), The determination of thorium by proportional counting of thoron. Off. Techn. Serv. U. S. Dep. Commerce, Washington, rapport X. W. 32.436, avril 1956.
[Sk-1] Skorka (S.), *Atomkern Energie*, 1958, **3**, 182.
[Sm-1] Smith (R. C.), *Nucleonics*, 1952, **10**, n° 10, 71.
[So-1] Soulhier (R.), Réalisation et étude d'un système de dosage continu de gaz radioactifs. Thèse d'Ingénieur-Docteur, Toulouse, 1960, n° 49.
[Sp-1] Spaa (J. H.), *C. R. Conf. Intern. Appl. Pac. Energie Atomique*, Genève, 1958, vol. **21**, 169.
[St-1] Stierstadt (K.), *Atomkern Energie*, 1959, **4**, 147.
[St-2] Stokinger (H. E.) et Laskin (S.), *Nucleonics*, 1950, n° 8.
[St-3] Stranks (D. R.), *J. Sc. Instr.*, 1956, **33**, 1.
[St-4] Strube (H.), *Schwebstofftechn. Arbeit.*, 1958, **23**, 27.
[Ta-1] Tanaevsky (O.) et Vassy (E.), *Ann. Géophys.*, 1955, **11**, 486.
[Tr-1] Trembaczowski (E.), *Acta Geophys. Polonica*, 1953, **1**, 126.

[Va-1] VAN-DILLA (M. A.) et TAYSUM (D. H.), *Nucleonics*, 1955, **13**, n° 2, 68.
[Vo-1] VOHRA (K. G.), *C. R. Conf. Intern. Appl. Pac. Energie Atomique*, Genève, 1955, vol. **6**, 872.
[Vo-2] VOHRA (K. G.), *C. R. Conf. Intern. Appl. Pac. Energie Atomique*, Genève, 1958, vol. **23**, 367.
[Wa-1] WATSON (H. H.), *Rev. Trans. Faraday Soc.*, 1936, **32**, 1073.
[Wa-2] WATTS, BRAUNER, BURGWALD et REIFFEL, *Nucleonics*, 1951, **9**, n° 3, 72.
[Wi-1] WILKENING (M. H.), *J. Geophys. Res.*, 1909, **64**, 54.
[Wi-2] WILKENING (M. H.), *Rev. Sc. Instr.*, 1952, **23**, 13.
[Wi-3] WILKENING (M. H.), *Nucleonics*, 1952, **10**, n° 6, 36.
[Wi-4] WILKENING (M. H.), *Trans. Amer. Geophys. Union*, 1956, **37**, 177.
[Wi-5] WILKENING (M. H.), *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1956, **1**, n° 1, 35.
[Wi-6] WILSON, LASKIN et MEIER, Design of an oscillatory thermal precipitator. Univ. Rochester, Atom. Energ. Quarterly Report (Dec. 1949).

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM TOME 22, JANVIER 1961, PAGE 59.

LETTRES A LA RÉDACTION

MODULATION DE LA LUMINESCENCE EXCITÉE PAR DES RAYONS α DANS CERTAINS SULFURES DE ZINC SOUS L'ACTION DE CHAMPS ALTERNATIFS

Par R. HENCK et A. COCHE,
Département de Chimie Nucléaire,
Centre de Recherches Nucléaires, Strasbourg.

Différents auteurs (Halsted [1], Daniel et coll. [2]) ont montré que la lumière émise par certains sulfures de zinc, excités par des rayonnements ultra-violets et soumis à des champs alternatifs, était modulée à la fréquence du champ ou à la fréquence double, suivant la longueur d'onde de la lumière excitatrice. Jaffe a observé également ce phénomène lors d'une irradiation par des rayons cathodiques [3].

Nous avons étudié les ondes de luminance qui apparaissent en appliquant des champs alternatifs (50 Hz) à des sulfures mixtes de zinc et de cadmium (88 % SZn, 12 % SCd) activés au manganèse en proportion variable et excités par les rayons α d'une source de ^{210}Po (0,5 mC). Les concentrations en manganèse des différents sulfures [1] sont comprises entre 10^{-2} et 10^{-4} g Mn/g SZnCd : A (10^{-2}), B (5.10^{-3}), C (10^{-3}), D (5.10^{-4}), E (10^{-4}). Les poudres luminescentes, dispersées dans de l'araldite (épaisseur environ 100 μ), sont placées entre les armatures d'un condensateur plan : l'une est constituée par une lame de verre conducteur transparent, l'autre par une couche métallique (argent ou aluminium) évaporée sous vide et suffisamment mince pour laisser passer les rayons α.

Cette cellule est posée sur un photomultiplicateur (Dario 53 AVP) dont l'anode est reliée à l'un des amplificateurs (à courant continu) d'un oscilloscope à deux voies. La deuxième voie permet d'observer, en même temps que l'onde de luminance, la tension appliquée à la cellule. On a examiné successivement les phénomènes dans les deux bandes d'émission (bleue et orange) des scintillateurs, en plaçant entre la photocathode et le condensateur luminescent, des filtres interférentiels, dont les maximums de transmission se situaient respectivement à 4 790 et 5 840 Å.

(1) Fournis par les Établissements Massiot-Fluor.

La figure 1 montre les résultats obtenus dans la bande orange (*a*) et dans la bande bleue (*b*), avec le scintillateur D (5.10^{-4} g/g Mn). Dans ce cas, l'électroluminescence produite par la tension appliquée (200 volts, 50 Hz) est négligeable. Ces ondes de luminance présentent, dans les deux bandes d'émission, deux maximums par période du champ.

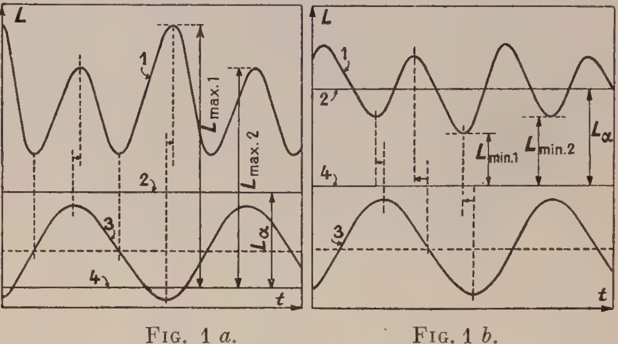


FIG. 1 *a*. Scintillateur D. Bande orange.

FIG. 1 *b*. Scintillateur D. Bande bleue.

1. — Onde de luminance ; 2. — Excitation α ; 3. — Tension appliquée. ; 4. — Niveau zéro.

Dans la bande de plus grande longueur d'onde, pour tous les scintillateurs étudiés, la valeur minimale $L_{Min.}$ de la luminance, atteinte quand la tension passe par zéro, est supérieure à la valeur L_α de la luminescence produite par les rayons α en l'absence de champ. Les maximums sont déphasés (légèrement en retard) par rapport à ceux de la tension, le maximum principal $L_{Max.1}$, se produisant quand l'électrode métallique traversée par les rayons α est négative par rapport au verre conducteur. Jaffe a trouvé un effet identique (3), alors que Halsted observe le maximum de lumière lorsque l'électrode métallique est positive. Ces résultats sont confirmés en utilisant une tension obtenue par redressement d'une alternance (*fig.* 2*a*) : dans l'intervalle t_2, t_3, la luminance reste supérieure à L_α et l'émis-

sion de lumière est maximale lorsque la valeur instantanée de la tension l'est également.

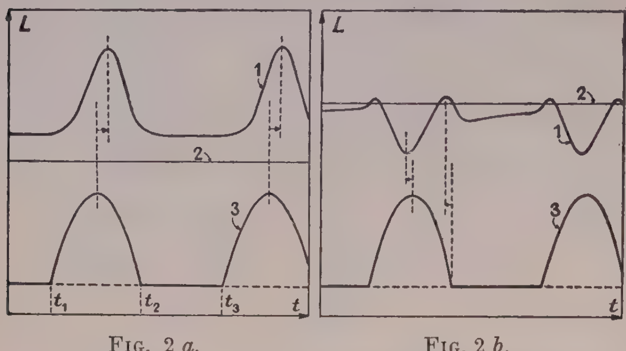


Fig. 2 *a*.
Scintillateur C.
Bande orange.

Fig. 2 *b*.
Scintillateur E.
Bande bleue.

1. — Onde de luminance ; 2. — Excitation α ; 3. — Tension appliquée ; 4. — Niveau zéro.

Dans la bande bleue, les phénomènes sont différents : la valeur moyenne de l'onde de luminance est inférieure à L_α, les maximums sont atteints lorsque la tension est proche de zéro, tandis que les minimums sont en légère avance de phase par rapport aux maximums de la tension, et le minimum principal $L_{\text{Min.1}}$ se produit lorsque l'électrode métallique de la cellule est négative. Avec la tension redressée utilisée précédemment, on observe (*fig.* 2*b*) des minimums en phase avec la tension. Ceci montre que le mécanisme d'émission de la lumière bleue est différent de celui de l'émission orange.

L'étude des variations relatives des grandeurs définies sur les figures 1, *a* et *b*, soit $\Delta L_{\text{Max.}} = \dfrac{L_{\text{Max.}} - L_\alpha}{L_\alpha}$ et $\Delta L_{\text{Min.}} = \dfrac{L_{\text{Min.}} - L_\alpha}{L_\alpha}$, en fonction de la tension appliquée au scintillateur, fait apparaître des différences caractéristiques, suivant la bande d'émission considérée. A titre d'exemple, on a représenté sur les figures 3*a* et 3*b* les résultats trouvés avec le scintillateur D mentionné précédemment.

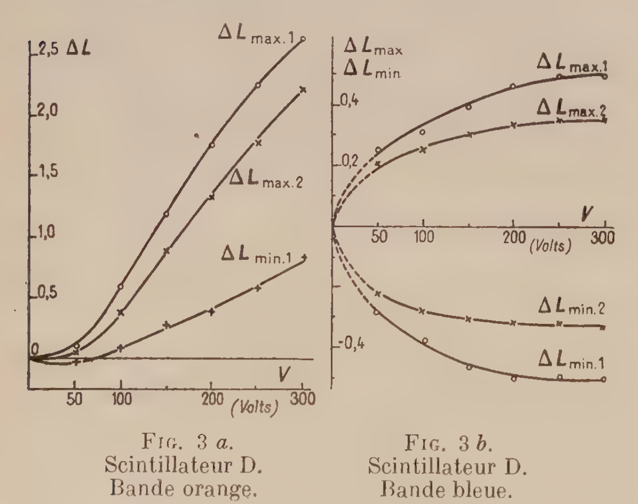


Fig. 3 *a*.
Scintillateur D.
Bande orange.

Fig. 3 *b*.
Scintillateur D.
Bande bleue.

Dans la bande orange, les diverses grandeurs $\Delta L_{\text{Max.}}$ et $\Delta L_{\text{Min.}}$ sont positives (en ce qui concerne $\Delta L_{\text{Min.}}$, ceci n'est le cas qu'au-dessus d'une certaine tension — 70 volts dans l'exemple considéré — pour les scintillateurs ayant une concentration en manganèse inférieure ou égale à 5.10^{-4} g/g) ; elles augmentent lorsque la tension croît, mais tendent vers une limite aux tensions élevées, d'autant plus rapidement que la concentration en manganèse est plus grande. La valeur maximale de $\Delta L_{\text{Max.}}$ est obtenue avec le scintillateur dont la teneur en manganèse est de 10^{-3} g/g ; elle est de l'ordre de 5 à 300 volts.

Dans la bande bleue, $\Delta L_{\text{Max.}}$ est positif, croît avec la tension, mais tend vers une limite qui est atteinte d'autant plus rapidement que la concentration en manganèse est plus faible. $\Delta L_{\text{Min.}}$ est négatif et diminue au fur et à mesure que la tension augmente.

Si nous définissons un pourcentage de modulation M par la relation : $M = 100\,\dfrac{L_{\text{Max1.}} - L_{\text{Min.1}}}{L_{\text{Max.1}} + L_{\text{Min.1}}}$, nous trouvons des valeurs du même ordre de grandeur que celles signalées par Halsted (ces dernières étant obtenues pour une modulation à la fréquence du champ, alors que, dans nos expériences, elle a lieu à une fréquence double), soit 50 % dans les conditions les plus favorables.

La figure 4 montre, pour les différents sulfures A, B, C, D, E, la variation de M, en fonction de la tension, dans les deux bandes d'émission. On voit que M augmente d'abord avec la tension, puis passe par un maximum plus ou moins accentué, ou tend vers une

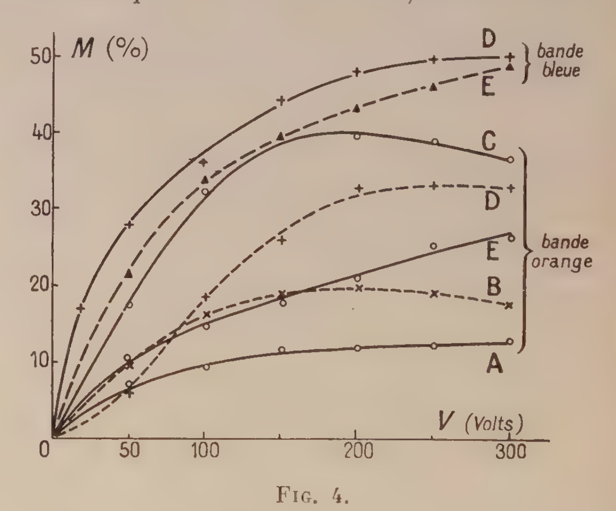


Fig. 4.

limite. Les valeurs maximales s'observent dans la bande bleue des scintillateurs ayant des concentrations en manganèse faibles (10^{-4} et 5.10^{-4} g/g), où elles sont d'environ 50 %. Dans la bande orange, la modulation maximale ne dépasse pas 40 %.

Lettre reçue le 2 novembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Halsted (R. E.), *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 1897.
[2] Daniel (P. J.), Schwarz (R. F.), Lasser (M. E.) et Hershinger (L. W.), *Phys. Rev.*, 1958, **111**, 1240.
[3] Jaffe (P. M.), *J. Electrochem. Soc.*, 1959, **106**, 667.

SUR QUELQUES ASPECTS DE TRACES DE PARTICULES IONISANTES DANS DES ÉMULSIONS PHOTOGRAPHIQUES PEU SENSIBLES

Par Marie Ader
avec la collaboration technique de
Marie Paule Houard-Cabannes,

Laboratoire de Physique Atomique et Moléculaire
du Collège de France.

Nous utilisons des émulsions Ilford $K0$, K-1, K-2 et ces mêmes émulsions imprégnées de bore. On sait que ces dernières peuvent enregistrer des protons de plusieurs MeV (1).

Nous montrons des traces de protons et de particules de parcours anormalement long du Po, en incidence presque rasante dans des émulsions $K0$ et dans des émulsions K-1 et K-2 imprégnées de bore.

Un examen attentif des émulsions ainsi irradiées (2) suggèrerait quelques remarques :

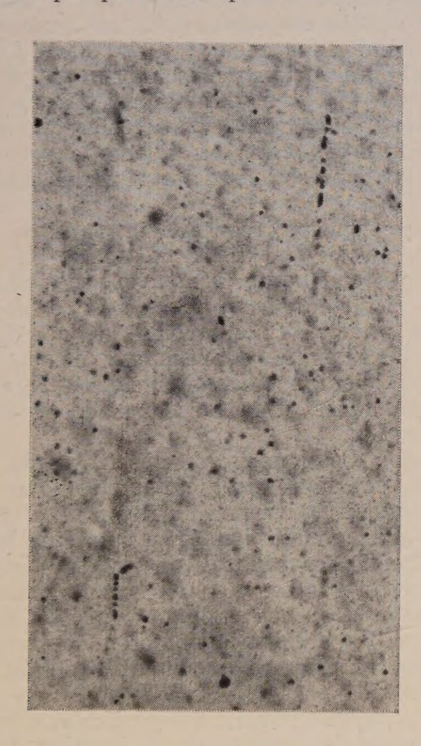


Fig. 1. — Dans l'émulsion K_0, des fins de traces de protons.

Les traces de particules de faible énergie sont formées de segments denses, rectilignes, séparés par des lacunes souvent très petites et par suite peu apparentes ; les traces de particules d'énergie plus élevée sont des files de grains interrompues par des lacunes. Dans 70 % environ des cas, un changement de direction de la trace est précédé d'une lacune apparente ; souvent, et

(1) 2e Colloque International de Photographie Corpusculaire, Montréal, 1958. Les Presses Universitaires de Montréal, 1959, p. 264.

(2) Les irradiations ont été faites à l'I. N. S. T. N. à Saclay.

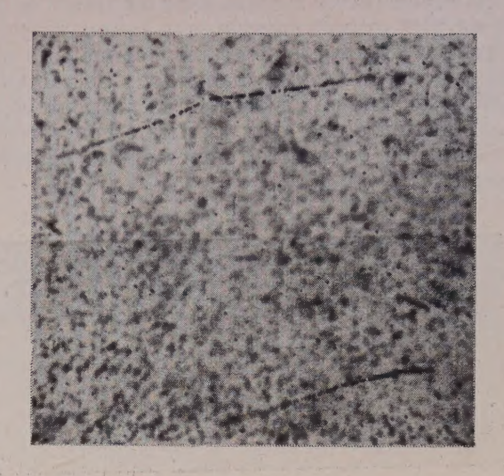


Fig. 2.

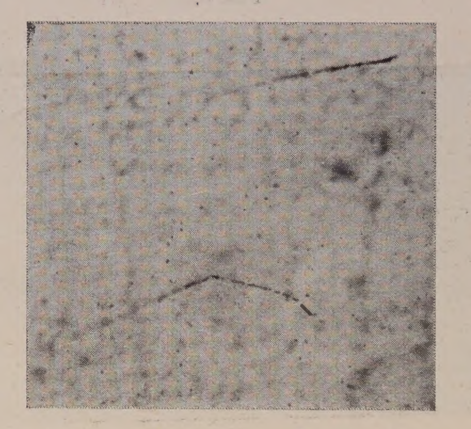


Fig. 3.

Les clichés 2 et 3 montrent des traces de protons dans une émulsion K-1 imprégnée de bore. Les déviations et variations de densité de grains après lacune sont apparentes.

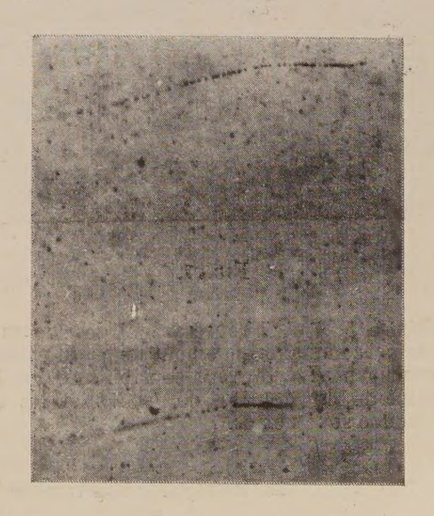


Fig. 4.

ceci est remarquable surtout dans les traces de particules de plus grande énergie, une lacune marque un changement de densité de grains, comme si le phénomène de capture suivi d'abandon, entraînait une variation sensible de l'énergie de la particule et, peut-être, l'émission d'une autre particule non enregistrée par l'émulsion ou neutre, emportant le supplément d'énergie.

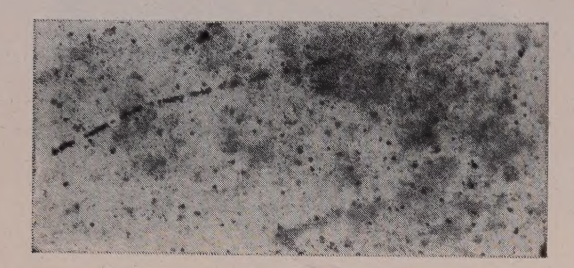


Fig. 5.

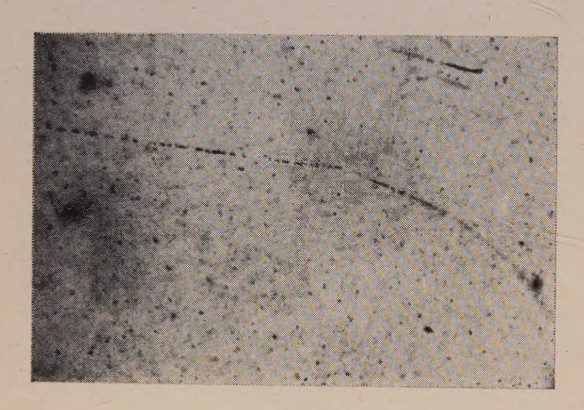


Fig. 6.

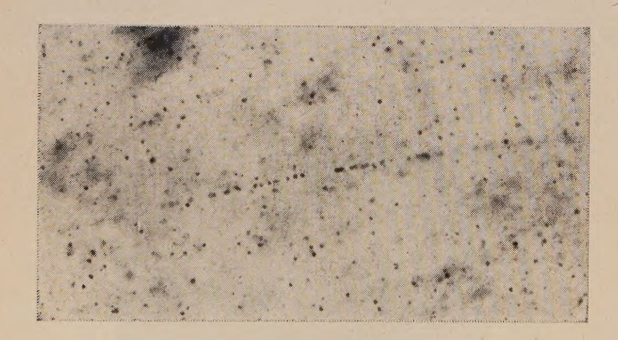


Fig. 7.

Les Clichés 4, 5, 6 et 7 représentent des traces de particules de parcours anormalement longs du polonium dans les émulsions K-1 et K-2 sensibilisées au bore. Les changements de densité de grains et les déviations après lacune sont nettes.

Lettre reçue le 8 novembre 1960.

POUVOIR D'ARRÊT DE L'OR POUR DES PARTICULES ALPHA DE 14,36 MeV

Par C. Gérardin, R. Bilwes et D. Magnac-Valette,

Département de Physique Corpusculaire, C. R. N., Strasbourg-Cronenbourg.

Pour détecter les particules chargées et mesurer leur énergie, les physiciens utilisent souvent des feuilles métalliques dont le pouvoir d'arrêt est supposé connu. Or, nous avons constaté des différences appréciables d'un auteur à l'autre. C'est ainsi que pour absorber des particules alpha de 14 MeV par l'aluminium, on trouve dans la littérature 29,4 mg/cm² [1] et 27,6 mg/cm² [2]. Les auteurs procèdent généralement de la manière suivante : à l'aide de considérations théoriques, ils déterminent la courbe dE/dx et tracent la courbe intégrale dont ils ajustent les ordonnées à l'aide d'un point expérimental.

Pour nos expériences, nous avions à utiliser des feuilles d'or, et ne disposions que d'une seule courbe [1] et d'un point expérimental à 4,5 MeV [3]. Ainsi, à 4,5 MeV, les épaisseurs de l'absorbant étaient de 14,6 mg/cm² [1] et de 17 mg/cm² [3]. Nous avons tout d'abord pensé que la valeur théorique de dE/dx ne coïncidait pas avec les valeurs expérimentales. Notre article rend compte de cette vérification entre 9 et 14 MeV.

A l'aide d'un spectrographe magnétique du type Buechner, associé au Van de Graff de 5,5 MeV de Strasbourg-Cronenbourg, nous avons mesuré l'énergie résiduelle des particules alpha de 14,36 MeV, après passage à travers des absorbants d'or d'épaisseurs diverses. Les alpha provenaient de la réaction $^{10}B(d, \alpha)^{8}Be$, pour une énergie incidente $E_d = 5$ MeV et correspondaient à la formation de l'état fondamental de ^{8}Be.

La courbe d'étalonnage du spectrographe dans la partie qui nous a intéressés, est donnée figure 1. Nous avons maintenu les valeurs du rayon de courbure au voisinage d'une valeur donnée en modifiant le champ. La précision n'est pas la meilleure qu'on puisse obtenir avec le spectrographe, mais elle est largement suffisante, comparée au « straggling » important des particules alpha. La fréquence de résonance nucléaire ν utilisée pour la mesure du champ est une fonction bien connue de $p^2/2m$: $\nu^2_{Mc} = K(p^2/2m)_{keV}$, p étant la quantité de mouvement des particules α et m leur masse. La courbe 1 donne k en fonction de la distance x des particules le long de la plaque qui les recueille. L'erreur relative sur l'énergie due à l'étalonnage est : $\Delta E/E = 3.10^{-3}$.

Il faut ajouter à ceci l'erreur relative sur l'énergie des particules alpha de 14,36 MeV, erreur due à l'épaisseur de la cible et à l'angle solide d'émission. Nous n'avons pas à tenir compte de la largeur naturelle du niveau fondamental de ^{8}Be qui est très faible (environ 5 eV). Nous avons estimé à 45 keV la demi-largeur à mi-hauteur du pic α sans absorbant. Nous nous sommes servis de la courbe d'étalonnage pour mesurer l'énergie de ce pic. En effet, la construction du spectrographe ne permet pas une mesure précise de l'angle d'émission et ainsi, l'énergie des alpha ne peut être déduite des données cinétiques de la réaction.

L'erreur relative sur l'énergie des α sans absorbant est alors de $4{,}5.10^{-3}$ et l'énergie de 14,36 MeV ± 0,06.

La courbe 2 représente la variation de l'épaisseur e

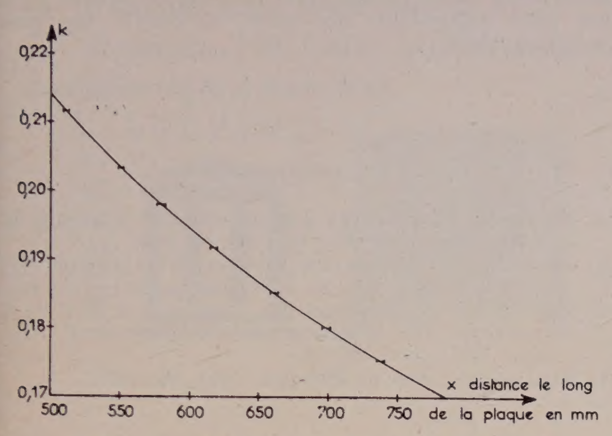


FIG. 1. — Étalonnage du spectrographe.

de l'absorbant en mg/cm² en fonction de l'énergie résiduelle E_f des particules α. Les barres horizontales indiquent la largeur du pic après absorption. Le tableau

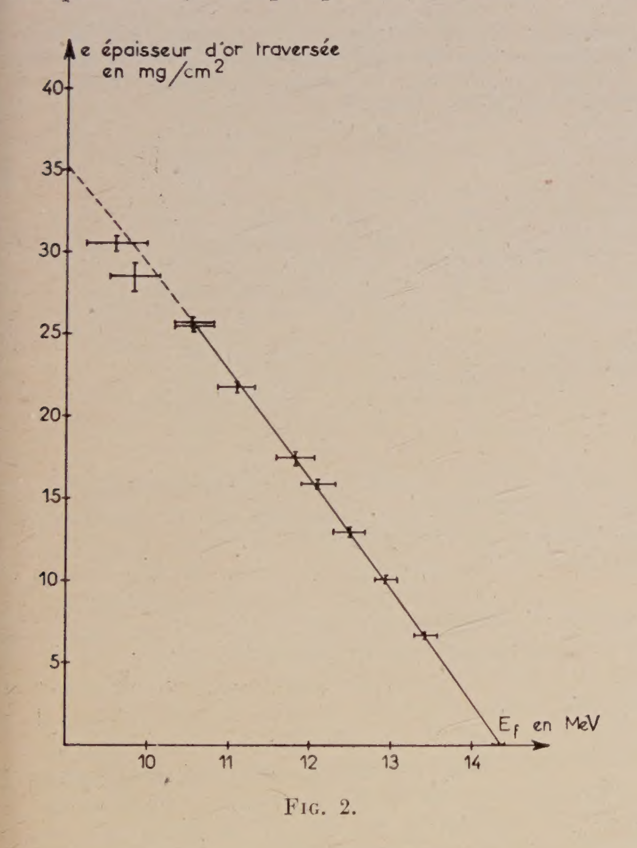


FIG. 2.

donne en même temps que les valeurs de E_f, celles de la fluctuation moyenne relative $\sqrt{\dfrac{< E - E_f >^2}{E_f}}$. Comme on le voit, ces valeurs sont de l'ordre du « straggling » moyen à ces énergies (environ 2.10^{-2}).

TABLEAU

ÉPAISSEUR TRAVERSÉE EN mg/cm²	ÉNERGIE RÉSIDUELLE EN MeV	$\dfrac{\sqrt{< E - E_f >^2}}{E_f}.10^{-2}$
—	—	—
0	14,36 ± 0,06	
6,72 ± 0,05	13,45 ± 0,14	0,9
10,14 ± 0,12	12,96 ± 0,15	1
12,96 ± 0,17	12,47 ± 0,22	1,7
15,90 ± 0,36	12,13 ± 0,22	1,8
17,56 ± 0,14	11,82 ± 0,25	2,1
21,85 ± 0,35	11,10 ± 0,24	2,2
25,48 ± 0,22	10,60 ± 0,28	2,6
25,76 ± 0,30	10,56 ± 0,29	2,7
28,63 ± 0,92	9,85 ± 0,35	3,5
30,61 ± 0,57	9,61 ± 0,38	3,9

Soient R_0 le parcours des α de 14,36 MeV dans l'or, e l'épaisseur de l'absorbant et R_f le parcours résiduel, nous avons $R_0 = R_f + e$. La courbe 2 donne $e = g(E_f)$.

Nous avons donc $R_f = R_0 - g(E_f) = f(E_f)$, la courbe $R = f(E)$ étant la courbe parcours-énergie (courbe 3). Nous voyons qu'il suffit de faire une

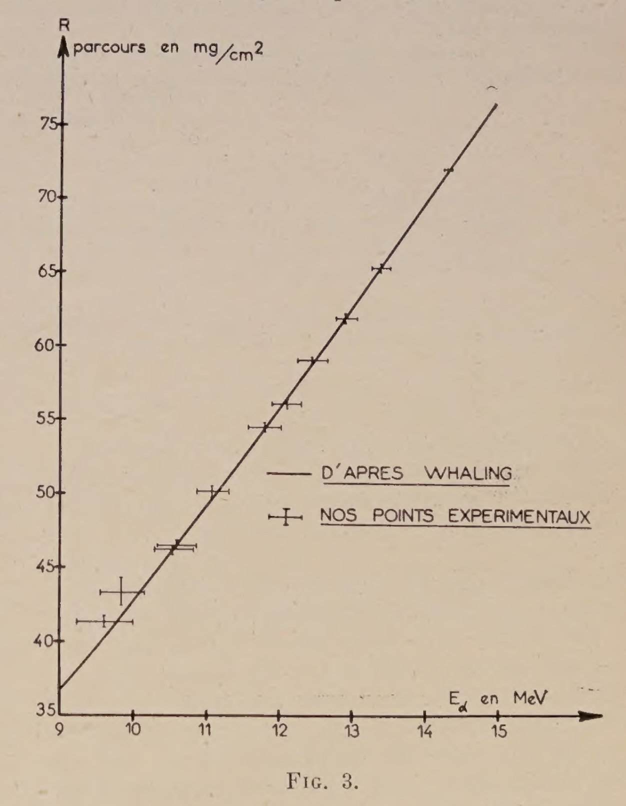


FIG. 3.

symétrie de la courbe 2 par rapport à l'axe des énergies pour obtenir une courbe déduite de la courbe (3), par une translation dirigée suivant l'axe des ordonnées. Nous avons ainsi vérifié que la pente de la courbe de Whaling coïncide sensiblement avec la pente de notre

courbe, sauf en ce qui concerne les points à 9,61 et 9,85 MeV.

En effet, le pic des particules α correspondant à l'état excité de 2,9 MeV du ^{8}Be s'élargit en même temps que le pic du fondamental, ce qui provoque un déplacement du maximum de ce dernier vers les basses énergies. Nous n'avons donné ces points qu'à titre indicatif.

Le point expérimental choisi par Whaling pour ajuster sa courbe est de détermination ancienne [4]. Il est visiblement en contradiction avec le résultat de Mme Faraggi [3]. Il nous reste donc à contrôler l'ordonnée absolue des deux points pour expliquer la divergence des résultats initialement constatée.

Remerciements. — Nous tenons à remercier M. le Pr P. Cuer, Directeur du Laboratoire pour ses précieux conseils, ainsi que le personnel technique du Groupe des Basses Énergies, dirigé par M. Marcel Liess, pour ses réalisations de grande classe qui ont facilité énormément ces travaux.

Nous saisissons cette occasion pour témoigner notre gratitude au Commissariat à l'Énergie Atomique pour son aide matérielle, qui nous a rendu les plus grands services.

Lettre reçue le 22 novembre 1960.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Whaling, The Energy loss of charged Particles in Matter. *Hand. der Physik*, 1953, **34**, 193.
[2] Aron (W. A.), Hoffmann (B. C.) et Williams (F. C.), A. E. C. U. 663, May 28, 1951. Range Energy Curves.
[3] Garin-Faraggi, Parcours des alpha de 4,5 MeV dans l'uranium, l'or, le zirconium et le silicium. *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 76.
[4] Rosenblum, *Ann. de Physique*, 1928, **10**, 408.

INFORMATION

La cinquième *conférence internationale sur les phénomènes d'ionisations dans les gaz,* organisée par l'Union des Sociétés de Physique allemandes, Section de Physique des Plasmas et de la Décharge dans les gaz, se tiendra à Munick, du 28 Août au 1er Septembre 1961. *Renseignements et inscriptions* : V Internationale Konferenz über Ionisationsphänomene in Gasen, Sekretariat, Munchen 1, Oscar von Miller Ring, 18.

Le Gérant : Maurice Blondin. — Dépôt légal : 1er trim. 1961. — Imp. Taffin-Lefort, à Lille (France).